### 世界知的所有権機関 国際 事務 局 特許協力条約に基づいて公開された国際出願



# (51) 国際特許分類6

H01M 8/04, 8/02, 8/06, 8/10

A1

(11) 国際公開番号

WO98/52242

(43) 国際公開日

1998年11月19日(19.11.98)

(21) 国際出願番号

PCT/JP98/01707

(22) 国際出願日

1998年4月15日(15.04.98)

(30) 優先権データ

特願平9/124221 特願平9/188572 特願平9/257330 1997年5月14日(14.05.97) 1997年7月14日(14.07.97)

1997年9月22日(22.09.97)

(71) 出願人(米国を除くすべての指定国について)三洋電機株式会社(SANYO ELECTRIC CO., LTD.)[JP/JP]〒570-0083 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 Osaka, (JP)

(72) 発明者;および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ)

安尾耕司(YASUO, Takashi)[JP/JP]

中岡 透(NAKAOKA, Toru)[JP/JP]

濱田 陽(HAMADA, Akira)[JP/JP]

三宅泰夫(MIYAKE, Yasuo)[JP/JP]

吉本保則(YOSHIMOTO, Yasunori)[JP/JP]

唐金光雄(KARAKANE, Mitsuo)[JP/JP]

〒570-0083 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 Osaka, (JP)

(74) 代理人

弁理士 中島司朗(NAKAJIMA, Shiro)

〒531-0072 大阪府大阪市北区豊崎三丁目2番1号 淀川5番館6F

Osaka, (JP)

JР

JP

(81) 指定国 CA, CN, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類

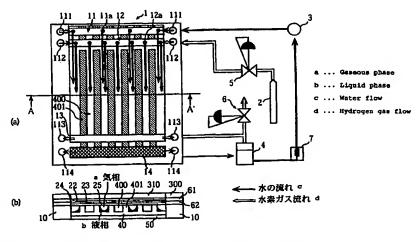
国際調査報告書

# (54)Title: SOLID POLYMER FUEL CELL CAPABLE OF STABLY PROVIDING EXCELLENT POWER GENERATION CHARACTERISTICS

(54)発明の名称 安定して優れた発電特性を得ることができる固体高分子型燃料電池

#### (57) Abstract

A solid polymer fuel cell which can stably generate electric power for long, because the cell is enabled to uniformly supply a fuel gas to all anodes by means of extended flow passages which are extended from anode-side flow passages and formed on an anode-side plate on the downstream side of the ends of the anodes in the direction of fuel gas flow, a water absorbing means for nearly uniformly performing water absorption, water retention, and drainage on all channels provided at the ends of the extended flow passages, and a selective gas discharging means for discharging a gas more selectively than water on the upstream side of the water absorbing means. In addition, the power generation characteristics and service life of the fuel cell can be improved further, because the cell can maintain a solid



polymer film in a moist state as a whole and can efficiently supply the fuel gas to all anodes by a means for distributing the fuel gas to the inlet sections of the anode-side flow passages and a means for distributing water from a water source to the inlet sections of the anode-side flow passages through holes having a prescribed form and leading to the inlet sections of the anode-side flow passages.

# (57)要約

本発明の固体高分子型燃料電池は、アノード側のプレートに、燃料ガス流れ方向のアノードの終端よりも下流側にアノード側流路から延設された延設流路を形成し、その延設流路の終端に吸水、保水、排水を全チャネルに概均一に行う吸水手段を設けると共に、その上流にガスを水よりも選択的に排出するガス選択排出手段を設けることによって、アノード全体に対して燃料ガスを均一に供給することができるので、経時的に安定した発電が可能となる。

また、各アノード側流路の入口部に燃料ガスを分配する手段と、水流通空間から各アノード側流路の入口部に通ずる所定の形態の孔を通して水供給源からの水をアノード側流路の入口部に分配する手段とを設けることによって、固体高分子膜を全体的に保湿し且つ燃料ガスをアノード全体に効率よく供給できるので、電池の発電特性や寿命特性を更に向上させることができる。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

化二十氢二氯丙基 蘇

アルバメニトラー アルバメニトラー オーマー オーマー オースルバ・ス オースルバ・ス ボルルギー ボルルギー アアイン ボルルギー アアイン ボルルギー アアイン アクリー リベリア レソトアニア リトアニアルグ ラトアニンアルグ ラトヴコ モルドヴァ マダガスカル マ女和ロ マリンゴ スロヴァキア シエラ・レオネ セネガル スワジランド チャード LS LT LU LV AM GBDEH TD MC MD BBBBBBBBBCCCCCCCCCCCDDEE TTTTTTUUUUVY GM GN GW GR MG MK MIN MW MELOZLTOU PROU HILLITIEGPRZC ヴィェトナム ユーゴースラビア ジンパブエ スイスコートジボアール カメルーン 中国 JP 日本 大E ケニア 大E ケールギスタン 大R 株園 大R 株園 大R 株園 大R 神間 フスタン 大B セントアシンア しL リリ・ フリ・ フリンシカ ルーマニア ロシア スーダン スウェーデン シンガポール スロヴェニア SD

#### 明細書

# 安定して優れた発電特性を得ることができる固体高分子型燃料電池

#### 技術分野

5 固体高分子型燃料電池に関し、特に、アノード側の流路に燃料ガスと液体の水 とを供給して発電を行う固体高分子型燃料電池に関する。

#### 背景技術

10

15

20

25

固体高分子型燃料電池は、固体高分子膜の一方の側にカソードが配され他方の側にアノードが配されたセルが、ガス流路が形成された一対のプレート部材で挟持された基本構造であって、実用化されているものの多くは、このような基本構造の単位セルが多数積層されて構成されている。そして運転時には、カソード側の流路に酸化剤としての空気を、アノード側の流路に燃料ガスを供給し、電気化学的に反応させて発電を行う。

ところで、固体高分子型燃料電池は、運転中に固体高分子膜のイオン導電性を確保するためにこれを保湿する必要があり、そのため、従来から空気や燃料ガスを加湿して供給することにより固体高分子膜を保湿する方式が多く用いられてるが、これに代わって、例えば特開平5-41230号公報に開示されているように、アノード側流路を構成する複数のチャネルの各々に燃料ガスと液体の水とを分配して共に流通させることによって、アノードに対する燃料ガスの供給と固体高分子膜の保湿を効率よく行うと共に電池の冷却も行うことのできる固体高分子型燃料電池も開発されている。

また、燃料電池において優れた電池特性を得るためにはアノード全体にわたって燃料ガスを行きわたらせることが必要である。そのため、この方式の固体高分子型燃料電池においては、アノード側チャネルが水で閉塞して燃料ガスの流れが止まることのないようにすることが望まれる。

この点を考慮して、従来から、当該チャネルを鉛直方向に向けて燃料ガス及び

水を下方向に流通させた後、電池下部の共通の排出管を経由して電池の外部に排出するような構成となっているが、それでもアノード側チャネルの下流端は、気体である燃料排ガス、固体である流路基板、液体である水の3相が接するため、毛細管現象により水のメニスカスが形成されて燃料ガスが流れなくなりやすいという問題がある。

5

10

15

20

25

図1は、アノード側チャネルの下端部でメニスカスが形成され、ガスの流通が 閉塞される様子を示す模式図である。このようなメニスカスが形成されると、そ のチャネルは閉塞されるのでアノードに対する燃料ガスの供給は不均一となって しまう。

このような水によるチャネルの閉塞を防止する対策として、毛細管現象が生じないようにチャネルの幅を広く設定することも考えられるが、チャネル幅を広げると燃料電池内の電気抵抗が大きくなる点で望ましくない。

また、燃料ガスを高圧で供給して、チャネル内を高速で流通させることも考えられるが、この場合、燃料ガスの高圧供給及び回収ための装置が必要となり、携帯用などコンパクトなシステムを実現する上で望ましくない。

また、固体高分子型燃料電池において、優れた電池特性を得るためには、固体 高分子膜の全体にわたって保湿することも必要である。

ところが、従来のこの方式の固体高分子型燃料電池においては、複数のアノード側チャネルの中で水が偏って流れる傾向がある。即ち、アノード側チャネルに水を分配する通路の上流側に位置するチャネルには水が供給されやすいが、下流側に位置するチャネルには供給されにくいので、固体高分子膜の中でこの下流側に位置するチャネルに対向する部分には保湿されにくい。

この問題に対して、供給する水量を大きくすれば固体高分子膜の全体に水を行きわたらせることも可能であるが、そのために大きな容量のポンプが必要となる上に、水が供給されやすいチャネルに対してはかなり過剰に水が供給されてしまうためアノードへの燃料ガスの供給効率が悪くなりやすい。

そこで、本発明は、アノード側通路に燃料ガス及び水を供給して発電する固体

高分子型燃料電池において、アノード全体に安定して燃料ガスを供給できると共に固体高分子膜を全体的に保湿することが可能なものを提供することを目的とするものである。

#### 5 発明の開示

本発明は、固体高分子型燃料電池において、アノード側のプレートに、燃料ガス流れ方向のアノードの終端よりも下流側にアノード側流路から延設された延設流路を形成し、その延設流路に、ガスを水よりも選択的に排出するガス選択排出手段を設けることによって、燃料ガスが流路内で閉塞されるのを回避し、アノード全体に対して燃料ガスを供給することができるので、経時的に安定した発電が可能となる。

また、各アノード側流路の入口部に燃料ガスを分配する手段と、水流通空間から各アノード側流路の入口部に通ずる所定の形態の孔を通して水供給源からの水をアノード側流路の入口部に分配する手段とを設けることによって、固体高分子膜を全体的に保湿し且つ燃料ガスをアノード全体に効率よく供給できるので、電池の発電特性や寿命特性を更に向上させることができる。

また 水を分配する際に、アノードと対向する複数のアノード側チャネルの中の特定のものに対してだけ水を分配するようにすれば、燃料ガスをアノード全体に更に安定して供給することができる。

20

25

10

15

#### 図面の簡単な説明

図1は、アノード側チャネルの下端部でメニスカスが形成され、ガスの流通が 閉塞される様子を示す模式図である。

図2は、実施の形態1に係る固体高分子型燃料電池を構成するセルユニットの 組立図である。

図3は、セルユニットの枠体の溝にOリングを填め込む様子を示す図である。 図4は、Oリングの突起部を含む断面を摸式的に示す図である。

図5は、実施の形態1の燃料電池の全体的な構成並びに運転動作を示す斜視図である。

- 図6は、上記燃料電池を水供給チャネルに沿って切断した断面図である。
- 図7は、上記燃料電池の構成及び運転動作を示す摸式図である。
- 5 図8は、実施の形態2の燃料電池をアノード側チャネルに沿って切断した断面 図である。
  - 図9は、実施の形態3にかかるセルユニットの構成を示す摸式図である。
  - 図10は、実施の形態4にかかる燃料電池のセルユニットの要部組立図である。
- 図11は、図10の燃料電池をアノード側チャネルに沿って切断した断面図で10 ある。
  - 図12(a)~(d)は、実施の形態4にかかる保水層の例を示す断面図である。
  - 図13 (A)  $\sim$  (C) は、実施の形態6にかかる細溝の断面形状の例を示す図である。
- 15 図14は、実施の形態7にかかる燃料電池を示す分解斜視図である。
  - 図15は、実施の形態7にかかる複合セパレータの組立図である。
  - 図16は、実施の形態7にかかる燃料電池を運転する様子を示す図である。
  - 図17は、図14のX-X線断面図である。
  - 図18は、図14のY-Y線断面図である。
- 20 図19は、実験1の説明図である。
  - 図20は、実験1の測定結果を示す特性図である。
  - 図21は、実験1の測定結果から導かれた特性図である。
  - 図22は、実験1の測定結果から導かれた特性図である。
  - 図23は、実験2の説明図である。
- 25 図24は、実験3の測定結果を示す特性図である。
  - 図25は、実験4の実験結果を示す特性図である。
  - 図26は、実験5の測定結果を示す特性図である。

図27は、実験6の測定結果を示す特性図である。

図28(A), (B)は、実験7の測定結果を示す特性図である。

図29(A), (B)は、実験8の測定結果を示す特性図である。

5 発明を実施するための最良の形態

[実施の形態1]

20

25

[燃料電池の構成について]

図2は、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池1 (以下、単に「燃料電池1」という。)を構成するセルユニット100の組立図である。

10 本図に示すように、セルユニット100は、長方形状の枠体10の片面側(図2では上面側)に、固体高分子膜21にカソード22及びアノード23を配してなるセル20と、複数のカソード側チャネル311…が平行に形成されたカソード側流路基板30とが填め込まれ、枠体10の他面側(図2では下面側)に、複数のアノード側チャネル400…が平行に形成されたアノード側流路基板40と仕切板50とが填め込まれて構成されている。なお、図2において、アノード23は固体高分子膜21の背面側にあるので破線で表示している。

セル20は、カソード側流路基板30とアノード側流路基板40とで挟持された状態で保持されており、アノード側チャネル400…には、図2の白抜き矢印で示す方向に燃料ガスが流れ、カソード側チャネル311…には図2の太矢印で示す方向に空気が流れ、セル20で発電がなされるようになっている。

燃料ガスとしては、水素ガスあるいは水素を主成分とする天然ガス. プロパン . プタン. メタノールなどの改質ガスを用いることができる。

燃料電池1は、このセルユニット100が所定枚数積層され、その両端が一対 の端板71.72(図2では不図示、図5参照)で挟持されて構成されている。

枠体10は、長方形状の板体に対して、その片面側(図2で上面側)の燃料ガス流通方向の中央部に、上記のセル20及びカソード側流路基板30を填め込むための切欠部101が形成され、他面側(図2で下面側)には、アノード側流路

基板40及び仕切板50を填め込む凹部103が形成され、更に切欠部101の中央部には、アノード側流路基板40とアノード23とが接触できるように窓102が開設された形状であって、プラスチック材料を射出成型することにより作製されたものである。

- 5 また、枠体10の燃料ガス流通方向に対する上流部には、水を供給するための一対のマニホールド孔111と構孔121並びに燃料ガスを供給するための一対のマニホールド孔112と構孔122が開設され、下流部には、未反応の燃料ガスを排出するための一対のマニホールド孔113と構孔123並びに水を排出するための一対のマニホールド孔114と構孔124が開設されている。
- 10 なお、各溝孔121~124は、アノード側チャネル400…と直交する方向に形成され、その両端が各マニホールド孔111~114と対応している。そして、枠体10の表面には、各溝孔121~124及び各マニホールド孔111~114を連通させる長円形状の表面溝131~134(図3参照)が形成されている。
- 15 固体高分子膜21は、パーフルオロカーボンスルホン酸からなる薄膜である。 カソード22. アノード23は、白金担持カーボンを材料とした所定の厚みの層であって、固体高分子膜21の中央部にホットプレスにより密着成型されている。 カソード側流路基板30は、枠体300に流路基板310が填め込まれて構成されている。
- 20 流路基板310は、カーボン多孔体からなる平板状の部材であって、カソード 22と対向する面(図2で下面)に、空気を流通させるチャネル311が形成されている。

枠体300は、長方形状の平板の中央に窓303が開設された形状でプラスチック材料からなり、カソード22側とは反対側の面(図2で上面側)に、空気をチャネル311に導入するためのチャネル301及び空気をチャネル311から 導出するためのチャネル302が形成されている。

25

なお、セル20とカソード側流路基板30との間にはガスケット61が介在し

、セル20と切欠部101との間にはガスケット62が介在している。

5

10

15

20

25

アノード側流路基板40は、枠体10より若干小サイズの長方形状のカーボン 多孔体であって、複数のアノード側チャネル400が互いに平行に形成されてい ると共にチャネル400間にはリブ401が形成されている。

このアノード側流路基板40は、燃料ガス流通方向の中央に位置する中央部40aと、この中央部40aから延設された上流部40b及び下流部40cからなり、中央部40aでは上流部40b及び下流部40cよりもリブ401の高さが高く設定されている。そして、このリブ401の高い部分401aが、上記の窓102に填まり込んでアノード23と電気的に接触するようになっている。

なお、図2では省略しているが、カソード22とカソード側流路基板30の間並びにアノード23とアノード側流路基板40との間には、溌水処理を施したカーボンペーパからなる集電体24、25が介挿されている(図7(b)参照)。

仕切板50は、アノード側流路基板40と同等のサイズの気密性ガラス状カーボン板であって、カソード側流路基板30とアノード側流路基板40との間に介在して配されており、両者を電気的に導通しながらカソード側チャネル311…を流れる空気とアノード側チャネル400…を流れる燃料ガスとが混流するのを防止する働きをなしている。

なお、図3に示すように、セルユニット100を積層して燃料電池を組み立てる際には、枠体10の表面溝131~134の周縁に設けた0リング用溝131b~134bに0リング135~138が填め込まれる。この0リング135~138は、枠体10どうしの間に挟まってこの部分をシールするものである。

Oリング $135\sim138$ において、各々の4隅には突起部 $135a\sim138a$ が形成されている。一方、枠体10にも、Oリング用溝 $131b\sim134b$ の4隅から突起して突起溝部 $131a\sim134a$ が穿設されており、これに上記突起部 $135a\sim138a$ が填め込まれている。

図4は、〇リング135の突起部135aを含む断面を摸式的に示す図であって、本図に示すように、〇リング135の突起部135aは、枠体10の突起溝

部131aに填まり込んでいる。

5

15

20

このように、枠体10のOリング用溝131b~134bにOリング135~138を装着する際に、突起部135a~138aが突起溝部131a~134a~134aに填め込まれることによってOリング用溝131b~134b内にしっかり固定される。

従って、セルユニット100を積層する際に、Oリング135~138を填めたセルユニット100を持ち運んだり、セルユニット100同士の位置合わせするのに伴って、Oリング135~138が脱落したり位置ずれしたりすることがない。

10 [燃料電池の運転動作についての説明]

図5は、燃料電池1の全体的な構成並びに運転動作を示す斜視図である。ここでは燃料ガスとして水素ガスを用いて運転する場合について説明する。

本図に示すように、運転時には、燃料電池1は、空気の流通路 (カソード側チャネル) が水平方向に向くように配置する。

そして、図示しないファンから、チャネル301…に空気を送り込む。この空気はカソード側チャネル311…を流通しながらカソード22に酸素を供給し、チャネル302…から電池の外に排出される。

一方、マニホールド孔112からなる内部マニホールドには、水素ガスボンベ2から水素ガスを供給し、マニホールド孔111からなる内部マニホールドには、水ポンプ3から水を供給する。

供給された水及び水素ガスは、各セルユニット100に分配され、各セルユニット100において、溝孔121及び溝孔122からアノード側流路基板40の上流部40bに分配されて、アノード側チャネル400…を下流側に流れ、アノード23への水素ガスの供給と固体高分子膜21の保湿を行う。

25 水ポンプ3の出力は、水供給用の溝孔121における水圧を計測して、この値 が所定の水圧値となるように調整する。

水素ガスの供給圧力はレギュレータ5で調整する。この圧力は、通常10~1

0万mmH<sub>2</sub>O、特に100~800mmH<sub>2</sub>O程度が適当である。一方、排出される未反応水素の圧力はレギュレータ6によって調整する。この排出圧力は、燃料電池1における燃料利用率が90%以上となるように調整する。

アノード側チャネル400…を通過した未反応水素ガスは、溝孔123からマニホールド孔113を通って電池の外に排出され、アノード側チャネル400…を通過した水は、溝孔124からマニホールド孔114を通って電池の外に排出される。

5

10

15

20

25

このように、燃料ガスは液体の水と分離された状態で排出される。このため、 排出されたガスを、分離タンク4を経由することなくそのまま回収して再利用す ることも可能である。

燃料電池1から排出される水と排気中に含まれた水蒸気が凝縮した水は、分離 タンク4で回収される。そして、回収された水は、冷却器7で冷却されて再び水 ポンプ3から燃料電池1に供給される。なお、水ポンプ3から燃料電池1に水を 送り込む配管をはじめとする配管系にフッ素系樹脂配管を用いれば、ステンレス 配管と比べて柔軟でサイクル運転時に配管の接続部分にかかる熱応力を緩和する ことができるので、この部分での水漏れを防止することができる。

[アノード側チャネルの上流から下流部までの詳細構成及び効果について]

上流部では、上記の水供給用の溝孔121に水分配基板11が、燃料ガス供給用の溝孔122にガス分配基板12が、〇リング(不図示)を介して填め込まれている。

この水分配基板11及びガス分配基板12は、どちらも長尺状の薄板に細孔1 1 a 及び細孔12a が開設されたものであって、アノード側流路基板40の上流 部40bに接して設置されているが、ガス分配基板12には、すべてのアノード 側チャネル400…に対応して細孔12a が開設されているのに対して、水分配 基板11には、アノード側チャネル400…の中の特定の水供給チャネルだけに 対応して細孔11a が開設されている。

この特定の水供給チャネルは、設計時に、アノード側流路基板40に形成され

ているアノード側チャネル400…全体の中から選択したものであって、水供給チャネルがアノード側流路基板40の表面全体にわたって分布するように、且つ水供給チャネル同士の間隔が離れすぎないように選択されており、アノード側チャネル400…に対して、水供給チャネルが1本おき又は2本おきに存在するように選択するのが望ましいと考えられる。

5

10

15

20

水分配基板11及びガス分配基板12の具体例としては、金属製(SUS304.SUS316等のステンレス鋼、Ti鋼)の薄板やセラミックス製(A12O3等)の薄板にエッチングで細孔を開設したもの、あるいはプラスチック製(ポリエステル系、ABS系、パーフェニルオキサイド系、PPE系、PPS系等)の薄板に細孔を開設したものを挙げることができる。

各細孔11aは、同一形状(例えば円形、楕円形、多角形)、同一の大きさで、個数も同一である(例えば、チャネル毎に1個づつ、2個づつ、或は3個づつ形成されている)。

水分配基板 110 厚さや細孔 11a の孔径は、細孔 11a を水が通過するときに適度な抵抗(圧損)が生ずるように設定することが望ましく、実用的には、基板の厚さを  $120\mu$  m~ 5 mm、細孔 11a の孔径を  $20\mu$  m~ 3 mmの範囲内で設定することが望ましい。

一方、下流部では、図2に示すように、上記の溝孔123には、アノード側チャネル400…からガスを選択的に排出する機能をもつガス透過基板13が、アノード側流路基板40の下流部40cに接するように填め込まれている。このガス透過基板13を透過したガスは、表面溝133を通ってマニホールド孔113にスムースに流れる。

ガス透過基板13の素材としては、次のようなものを挙げることができる。

からなる多孔質膜: ポリウレタンコートしたポリエステル繊維。

5

10

20

25

また、上記の溝孔124には、アノード側チャネル400…からの排水をすみやかに吸水し各チャネルとも均一に保水すると共に円滑に排水するために、吸水基材14がアノード側流路基板40の下流部40cの終端部に接するように填め込まれている(図6参照)。

吸水基材14の好ましい素材としては、ポリエステル、レーヨン、ナイロン、 ポリエステル/レーヨン、ポリエステル/アクリル、レーヨン/ポリクラール等 を主成分とする織布、不織布、フェルトを挙げることができる。

図6は、燃料電池1を水供給チャネルに沿って切断した断面図であって、チャネル内での気液混合物の生成、流れ、排出の様子を模式的に示している。

図7(a), (b)は、燃料電池1の運転動作を示すものであって、図7(a)はセルユニット100の上面を模式的に示す図であり、図7(b)はそのAーA、断面を模式的に示す図である。なお、図7に示すものでは、アノード側チャネル400…の中で水供給チャネルが1本おきに設定されている。

15 以上のような構成の燃料電池1は、以下のような作用効果を奏する。

\*アノード側チャネル400の中で細孔11aが開設されている水供給チャネルに対しては、水と燃料ガスとの両方が供給されて気液混合物が生成される。そして、気液混合物がこの水供給チャネルを流れることにより、アノードへの燃料ガスの供給と固体高分子膜の保湿を行うと共に、電池を冷却する冷媒としての働きも果たす。

一方、水供給チャネル以外のチャネル(細孔11aが開設されていないチャネル)に対しては、燃料ガスだけが供給され、当該チャネルを流通する燃料ガスがアノードに供給される。このチャネルには直接的に水は供給されないが、水供給チャネルを気液混合物が通過する時に蒸発する水分が、水供給チャネルの近くのチャネルにも拡散して加湿するので、この水分が拡散する範囲内では固体高分子膜21が保湿される。

従って、上述のように水供給チャネルを設定すれば、アノード23の配されて

いる領域全体にわたって固体高分子膜21を保湿することができる。

5

10

15

20

25

例えば、図7のように水供給チャネルを1本おきに設定した場合は、水供給チャネル以外のチャネルには、両側に隣接する水供給チャネルから水蒸気が拡散して入り込んでくる。また、水供給チャネルを2本おきに設定した場合、水供給チャネル以外のチャネルには、主に片側に隣接する水供給チャネルから水蒸気が拡散して入り込んでくる。

従って、これらの場合、固体高分子膜21の保湿は、アノード23の配されている領域全体にわたって良好になされる。

これに対して、水供給チャネルを3本おき以上の間隔で設定したとすれば、水供給チャネル以外のチャネルの中には、水供給チャネルと隣接しないものが生じる。従って、これらのチャネルに対しては、水蒸気が行きわたりにくいと考えられる。

\*仮に水分配基板として多孔質の基板を用いたとすれば、水分配基板のマニホールド孔111に近い部分では水がたくさん流通し、マニホールド孔111から遠い部分では水が流通しにくい。これに対して、本実施形態のように、所定の形状の細孔11aが開設された基板を用いた場合、ある程度の水圧がかからないと細孔から水が流れ出ないので、多孔質の基板を用いた場合よりも均一的に水を分配することができる。この点については実施の形態7で詳述する。

\*水分配基板において、水供給チャネルにだけ対応して細孔を形成しているので、全てのアノード側チャネル400…に対応して細孔を形成する場合と比べて細孔の数が少ない。従って、より少ない水の流量でも、全ての細孔11aから均一的に水を分配することができるので、アノード23の配されている領域全体で固体高分子膜21を保湿することができる。

\*アノード23への燃料ガスの供給は、水供給チャネル以外のチャネルにおいてはもちろん良好になされる。また、上記のように少ない水量でも水供給チャネルへ均一的に水が供給されるので、水供給チャネルにおいても気液混合物中の燃料ガスが比較的効率よくアノード23に供給される。よって、アノード23の全

体にわたって効率よく燃料ガスが供給される。

\*燃料電池1は、アノード側チャネル400の下流部において、終端部40d に隣接して配される吸水基材14によって各チャネルの吸水・保水・排水が概均 一に行われており、終端部40dよりも上流側にガスを選択的に排出する機構を 設けているので、いすれのチャネルにおいても、ガス・水の不均一な分配が生じ ない。従って、燃料ガスの流路が部分的に閉塞されることにより、燃料ガスの不 均一分配が生じ電池性能が低下するのを防止することができる。

\*アノード側流路基板40は親水性のカーボン多孔体で形成されているのに対して、アノード23上に配されている集電体25は廃水処理が施されているので、チャネル400の内面において、アノード側流路基板40の表面に対する水の接触角は、集電体25の表面に対する水の接触角よりも小さい。

従って、チャネル400内を気液混合物が流れるときに、液相と気相とが分離される傾向が生じる。即ち、水が基板40側に引きつけられて、アノード側流路基板40側には主に水からなる液相が存在し、アノード23 (集電体25)側には主に燃料ガスと水蒸気からなる気相が存在した状態で流れるので、アノード23に対する燃料ガスの供給が効率よくなされる。また、この分離作用によって、ガス透過基板13に直接接触するのは気相となるので、ガス透過基板13におけるガスの選択的な透過が水によって阻害される可能性が少なくなり、優れたガス透過効率を維持することができる。

20

25

15

5

10

## [実施の形態2]

本実施の形態の燃料電池は、上記実施形態1の燃料電池1と同様であるが、燃料電池1ではアノード側チャネル400の中の特定の水供給チャネルに対してだけ水を供給したのに対して、本実施の形態ではすべてのアノード側チャネル400に対して水を供給する。また、実施の形態1では、各アノード側チャネル400に対して、燃料ガスよりも水の方が上流側に供給されたが、本実施の形態では、水の方が燃料ガスよりも上流側に供給される。

即ち、本実施形態では、図2に示すセルユニット100において、溝孔121には水分配基板11は填め込まれず、マニホールド孔111には燃料ガスが供給され、この燃料ガスは溝孔121から各アノード側チャネル400…に分配される。一方、溝孔122には、ガス分配基板12と同様の各アノード側チャネル400…に対応する細孔が形成された水分配基板が填め込まれ、マニホールド孔112には水が供給され、この水は各細孔から各アノード側チャネル400…に供給される。

図8は、本実施形態の燃料電池をアノード側チャネルに沿って切断した断面図であって、チャネル内での気液混合物の生成、流れ、排出の様子を模式的に示している。

本実施形態では、すべてのアノード側チャネル400…において気液混合物が 生成されこれを流通するが、ガス透過基板13において気液混合物中のガスが選 択的に透過することにより水と分離して排出される点などについては、実施の形 態1の場合と同様である。

15

10

5

#### [実施の形態3]

図9は、本実施形態にかかる燃料電池のセルユニットを示す図であって、上記図7(a)と同様にセルユニットの上面を模式的に示す。

本実施の形態の燃料電池は、上記実施の形態1の燃料電池1と同様であるが、

20 図9に示すように、枠体10の表面には、ガス排出用のマニホールド孔113と水排出用のマニホールド孔114との間にわたって、両マニホールド孔113.114を連通する溝、ドレン溝115が穿設されており、このドレン溝115に、上記吸水基材14と同様の素材からなる吸水基材116が充填されている点、即ちドレン経路が設けられている点が異なっている。

25 燃料電池の運転中、特に高燃料利用率で運転する場合には、ガス排出用のマニホールド孔113の中でガス中の水分が凝縮することもあるが、ドレン溝115及び吸水基材116が設けられてることによって、マニホールド孔113内の水

が水排出用のマニホールド孔114の方へ導かれる。従って、凝縮水によるマニホールド孔113の閉塞は回避される。

一方、マニホールド孔113を流通するガスが水蒸気で飽和されていないときには、吸水基材116に吸収されている水が当該ガス中に気化する

なお、上記吸水基材116は、マニホールド孔113側の端部がマニホールド孔113の内部に若干突出して設けられている。これによって、マニホールド孔113内の水をより効率よく吸収することができると共に、マニホールド孔113内のガス中への気化もしやすくなる。

なお、ドレン溝115及び吸水基材116は、上記実施の形態2の燃料電池に 設けてもよく、同様の効果を奏する。

#### [実施の形態4]

5

10

15

20

本実施の形態の燃料電池は、上記実施の形態2と同様であるが、気液混合物の中のガスを選択的に排出する手段として、ガス透過基板13の代わりにスリット形成基板15を用いる点が異なっている。

図10は、本実施の形態にかかる燃料電池のセルユニットの要部組立図であり、図11は、この燃料電池をアノード側チャネルに沿って切断した断面図である。

これらの図に示すように、スリット形成基板15は、断面が「く」の字形に屈 折されて支持部15aと遮蔽部15bとが形成された板体であって、溝孔123 に沿って設けられている。

スリット形成基板15は、その支持部15aがアノード側流路基板40と枠体10とで挟持されて、遮蔽部15bが溝孔123の大部分を遮蔽し且つ遮蔽部15bと溝孔123の内面との間にガスが通り抜けるスリット15cが形成されるように取り付けられている。

25 図11に示すように、アノード側チャネル400を通過する気液混合物は、基板40側に水が引き付けられて分離し、スリット形成基板15側には主にガスが通過する。また、遮蔽部15bは、ガスが透過する方向に向かって次第にガス流

路が狭くなるよう傾斜しているため、スリット15cに向かうガスに含まれる水滴の多くは遮蔽部15bに付着する。そして、遮蔽部15bに付着した水はチャネル400側に戻されるので、スリット15cが水で封鎖されることもない。

従って、アノード側チャネル400を通過する気液混合物中のガスがスリット 15cを通って選択的に排出される。

なお、このようなスリット形成基板15は、実施の形態1の燃料電池にも適用でき、実施の形態1,2のガス透過基板13を用いた場合と同様の効果を奏する。

本実施形態においても、アノード側チャネル400は、実施の形態1, 2と同様、鉛直方向に向けて配置することが好ましい。

また本実施の形態では、スリット形成基板15を用いてスリット15cを形成する例を示したが、溝孔123の幅を小さくしてスリット状に形成しても、同様の効果は期待できる。あるいは、スリット状でなくても、水が滞留する領域よりも上流側で且つアノードの終端よりも下流側に、ガスが抜ける何らかの開口部を設ければ、ある程度の効果は期待できる。

15

20

25

10

5

#### [実施の形態5]

本実施の形態の燃料電池は、上記実施の形態2の燃料電池と同様であるが、ア ノード側流路基板40において、アノード側チャネル400の内面に、親水性材料を敷設することにより、流れ方向に沿って保水層が形成されている点が異なっている。

保水層を敷設する形態としては、図12(a)に示す保水層410のようにアノード側チャネル400の底面に敷設する形態、図12(b)に示す保水層411のようにアノード側チャネル400の両側面に敷設する形態、図12(c)に示す保水層412のようにアノード側チャネル400の片側面と底面に敷設する形態、図12(d)に示す保水層413のようにアノード側チャネル400の内面全体に敷設する形態などを挙げることができる。

このような保水層は、上記の吸水基材14と同様の親水性基材からなる帯状の

シートを、アノード側チャネル400の底面や側面に貼つけることによって容易に敷設することができる。

あるいは、シリカのような親水性粒子を含有する塗料(例えば、シリカとアクリル樹脂とメラミン樹脂とを混練した塗料)を、アノード側チャネル400の底面や側面に塗布することによっても保水層を容易に敷設することができる。

5

15

20

このようにアノード側チャネル400内に保水層を敷設することによって、気液混合物は、液相が保水層側に接し気相がアノード側に接するように、きれいに分離した状態でアノード側チャネル400内を流れる。従って、アノード23に対する燃料ガスの供給がより効率的になされる。

10 なお、図12(a)~12(d)において、破線Bは、液相と気相の界面の傾向を示したものである。

ここで、図12(a)~12(d)に示した4種類の形態の保水層410~4 13を比較すると、図12(a)の保水層410や図12(b)の保水層411 のようにチャネルの側面だけあるいは底面だけに保水層を敷設するよりも、図1 2(c)の保水層412や図12(d)の保水層413のようにチャネルの側面 と底面との両方に保水層を敷設する方が、液相が2方向の保水層によって安定し て保持され、よりきれいに液相と気相との分離がなされる。

また、用いる親水性材料が上記のように非導電性である場合は、リブ401の上面に保水層を敷設するとアノード23とアノード側流路基板40との導電性が損なわれ集電ができないが、親水性材料が導電性の場合(例えば、カーボンとシリカとを含有する導電性の親水性塗料を塗布する場合)は、これをリブ401の上面に敷設してもアノード23とアノード側流路基板40とが導通するので集電ができる。従って、導電性の親水性材料からなる保水層を敷設する場合には、アノード側流路基板40の表面全体に塗布してもよい。

25 また、本実施の形態のようにアノード側チャネル400内に保水層を敷設する場合、アノード側流路基板40自体に親水性や保水性がなくても、同様の効果が得られる。

従って、本実施の形態において、アノード側流路基板40の素材としてカーボン多孔体の代わりに膨張黒鉛、黒鉛、ファーネスブラックなどのカーボンにフェノール系などの樹脂を混合しモールド成形したような親水性の低い素材を使用しても、同様の効果を得ることができる。

5 なお、このような保水層410~413は、実施の形態1のアノード側チャネル400の水供給チャネルに設けても同様の効果を奏する。

#### [実施の形態6]

10

本実施の形態の燃料電池は、実施の形態2の燃料電池と同様であるが、実施の 形態2ではアノード側流路基板40をカーボン多孔体で形成したのに対して、本 実施の形態では、アノード側流路基板40が、膨張黒鉛、黒鉛、ファーネスブラ ックなどのカーボンとフェノール系などの樹脂との混合物からなるカーボンモー ルド成形品であると共に、アノード側チャネル400の底面に流れ方向に沿って 細溝が刻まれている、即ち条線加工されている点が異なっている。

上記のようにアノード側流路基板40を、黒鉛あるいはファーネスブラックなどを樹脂で結着したモールド成形品とした場合、カーボン多孔体の場合と比べて、安価ではあるがチャネル内に水が溜ってチャネルが閉塞しやすい傾向がある。しかし、上記のようにアノード側チャネル400の底面に細溝402が形成さすると、チャネル内に水が溜まったとしても、水溜りが大きく成長する前に流れてしまうので閉塞は生じにくい。これは、細溝402の形成によって、水溜りが底面と接触する面積が小さくなり、水溜りがチャネル内に保持される力が弱められるためと考えられる。

従って、本実施形態のアノード側流路基板40は、比較的安価で且つチャネルの閉塞も発生しにくいという効果を奏する。

25 アノード側チャネル400に形成する細溝402の断面形状は特に限定されない。

図13(A)~(C)は、細溝402の断面形状の例を示す図である。細溝4

02の断面形状は、図13(A)に示すように角形であってもよいし、図13(B)に示すようにU字形であってもよいし、図13(C)に示すように様々な形状のもの混ざっていてもよい。また、細溝402の間隔についても、図13(A).(B)のように一定間隔であってもよいし、図13(C)のように不定間隔であってもよい。

各チャネル400に形成する細溝402の数は、一本以上であれば効果を奏する。

細溝402の溝幅は、 $5\sim200~\mu$ mに設定することが望ましく、溝幅が $5~\mu$ m未満、あるいは $200~\mu$ mを越えた場合は、水溜りを防止する効果が小さくなる。

溝の深さについては、溝幅と同程度とするのが好ましいと考えられる。

このような細溝402は、溝幅 $100\mu$ m以上の大きなものについてはモールド成形用の金型の表面に細溝402に対応する突部を形成しておくことによって容易に形成することができる。一方、溝幅 $100\mu$ m未満の小さいものについてはモールド成形後に針などで溝を刻んでもよいし、(c)のような不定形状のものは研磨紙で研磨することによって形成することもできる。

なお、このような細溝402は、実施の形態1の燃料電池においても、アノード側流路基板40に形成しても同様の効果を奏する。この場合、すべてのチャネル400に細溝402を形成してもよいが、水供給チャネル以外にはほとんど水が溜まらないので、水供給チャネルだけに細溝402を形成してもよい。

#### [実施の形態7]

5

10

15

20

25

図14は、本実施の形態に係る固体高分子型燃料電池を示す分解斜視図である。

この固体高分子型燃料電池は、固体高分子膜521の一方の側にカソード52 2、他方の側にアノード523(図14では固体高分子膜521の背面にあって 見えない、図18参照)を配したセル520と、カソード側チャネル531及び アノード側チャネル541を持つ複合セパレータ500とが、ガスケット591

, 592を介して交互に積層され、その両端が一対の端板601, 602 (図16参照)で押さえられて構成されている。

なお、図14においては、1枚のセル10と2枚の複合セパレータ500だけが表示されている。また、図示しないが、カソード522とカソード側チャネル531との間、及びアノード523とアノード側チャネル541との間には、発水処理を施した集電体が介挿されている。

図15は、複合セパレータ500の組立図である。

5

15

20

25

本図に示すように、複合セパレータ500は、セパレータ枠体510の内側空間に各種部材530~570が填め込まれて構成されている。

10 セパレータ枠体510は、プラスチック等の材料からなり、その内側空間の上部には仕切511a及び仕切511bが、下部には仕切511cが架設されている。セパレータ枠体510の上端コーナー部には、水素供給用のマニホールド孔512及び水供給用のマニホールド孔513が開設されている。

上記仕切511aの上が水素用の溝孔515、仕切511aと仕切511bとの間が水用の溝孔516となっており、溝孔515は水素供給用のマニホールド孔512と連通し、溝孔516は水供給用のマニホールド孔513と連通している。

セパレータ枠体510の内側空間の中央部には、気密性のガラス状カーボン製からなる仕切板550を挟んで、一方側(図15の表側)からアノード側流路基板540が、反対側(図15の裏側)からカソード側流路基板530が填め込まれており、当該内部空間の下部は、気液混合物排出用のマニホールド孔514となっている。

カソード側流路基板530は複数のチャネル531及びリブ532が水平方向 に形成された多孔性カーボンからなる板であり、アノード側流路基板540は複数のチャネル541及びリブ542が鉛直方向に形成された多孔性カーボンから なる板である。

セパレータ枠体510の内部空間において、アノード側流路基板540の上側

には入口流路基板560が、アノード側流路基板540の下側には出口流路基板570が填め込まれている。

入口流路基板560は、入口チャネル561及びリブ562が形成されたプラスチックからなる帯板状の部材であって、入口チャネル561はアノード側流路基板540のチャネル541と同ピッチであるが表裏の向きは反対に取り付けられている。また、出口流路基板570も入口流路基板560と同様の部材であって、出口チャネル571及びリブ572が形成されている。

この3つの流路基板540.560.570のチャネル541.561.57 1は互いに連通し、気液混合物が流通する通路になっている。

入口流路基板560のリブ562の上には、帯状の水分配基板580が取り付けられている。この水分配基板580は、実施の形態例2の水分配基板と同様のものであって、溝孔516と入口チャネル561とを仕切っており、各入口チャネル561に対して水を分配するための細孔581が開設されている。

# [燃料電池の運転動作について]

5

10

15

25

図16は、上記構成の固体高分子型燃料電池を運転する様子を示す図である。 図17は図14のX-X線断面図、図18は図14のY-Y線断面図である。

図16~18において、水の流れを白抜き矢印で示し、水素の流れを細実線矢印は示し、気液混合物の流れを太実線矢印で示している。また、空気の流れを破線矢印で示している。

20 水素は水素ボンベ2から燃料電池の水素供給用のマニホールド孔512に供給され、各セパレータの溝孔515に分配される。そして、各溝孔515から更に入口チャネル561に分配されて下方へ流れる。

一方、水は、ポンプ3を駆動させることによって、気液分離タンク4から冷却器7を経由して燃料電池の水供給用のマニホールド孔513に供給され、各セパレータの溝孔516に分配される。そして、各溝孔516から更に細孔581を通って入口チャネル561に分配され、各入口チャネル561内で水素と混合されて気液混合物が生成される。

入口チャネル561内で生成された気液混合物は、チャネル541を通過しながら、アノード523に水素を供給すると共に固体高分子膜521を加湿し、チャネル571を通ってマニホールド孔514から型燃料電池の外に排出される。なお、この気液混合物は、燃料電池を冷却する冷媒としての働きもなす。

燃料電池に供給する水量の調整は、水圧計(図16中にPで示している)で水 分配基板580にかかる水圧を計りながら、これが所定の水圧となるようにポン プ3の出力をコントロールすることによって行う。

供給する水量としては、燃料電池を所定の運転温度(80℃程度)に保つ冷却力を得るだけの水量は必要であるが、アノード523に対する水素の供給を円滑に行うために、さらにポンプ3などの大きさを小さくするためにできるだけ少ない水量に設定することが望ましい。

燃料電池から排出された気液混合物は、気液分離タンク4に流れ込み、未反応水素と水とに分離されて、分離された水は再利用され、未反応水素は燃焼器(不図示)で燃焼処理される(図16参照)。

15 空気は、ファン(不図示)から空気供給マニホールド(不図示)を経由して燃料電池に送り込まれる。そして、チャネル531を通過しながらカソード522 に酸素を供給し、燃料電池から排出される。

なお、水素ガスの代わりに、水素リッチな改質ガスを用いても同様に運転する ことができる。

20 〔入口チャネルへの水の供給について〕

5

10

25

水分配基板580の材質や形状並びに細孔581の孔径などは、上記実施の形態1で説明した通りである。

適度な水量を得るための水圧Pも、細孔581の孔径によって変わるが、通常は $10\sim10$ 万mm $H_2O$ 、特に $100\sim800$ mm $H_2O$ 程度の範囲内で設定するのが望ましい。

ところで、本発明者等が先に日本国で出願した特願平7-296414においては、水の通路から多孔質基板(多孔性カーボン板)を通してアノード側のチャ

ネルの入口に水及び水素を送り込んで気液混合物を生成するようにした固体高分子型燃料電池が開示されているが、多孔質基板と水分配基板580とを比べると、多孔質基板の場合は細孔の大きさや形状にばらつきがあるのに対して、水分配基板580に形成されている細孔581は同一の大きさと形状である。

また、多孔質基板を用いた場合は、水の溝孔に水圧があまりかからない状態でも細孔から水が流れ出る現象が生じやすいのに対して、水分配基板580を用いた場合は、水の溝孔にある程度の水圧がかからないと細孔581から水が流れ出ない。

5

10

15

20

25

従って、低圧、小流量の水を供給する場合、水分配基板580を用いることによって、多孔質基板を用いる場合よりも、各入口チャネル561に対して均一的に水を分配することができる(図17の白抜き矢印参照)。

更に、多孔質基板の場合は、非常に多数の微細な孔が形成されているので、孔と孔との間隔が狭く、そのため孔から出る水どうしが互いに付着し合い、大きな水滴となって多孔質基板の出口側の表面に付着する傾向が強い。これに対して、水分配基板580の場合、孔と孔との間隔が広いので、孔から出る水どうしが互いに付着し合うことなく、そのため分散性の良好な気液混合物を生成することができる。

よって、水分配基板580を用いることにより、多孔質基板を用いる場合と比べて、入口チャネル561毎にばらつきの少ない均一的な気液混合物を生成することができる。

なお本実施の形態では、図18に示されるように、入口チャネル561において、水の流入口となる細孔581が、溝孔515から入口チャネル561への水素の流入口よりも下流側に位置しているが、この場合、入口チャネル561内に気泡が滞留しにくくなるので、気泡による入口チャネル561の閉塞が防止される。

[実施の形態1~7の変形例などについて]

実施の形態1では、すべてのチャネル400に対向してガス分配基板12に細

5

10

20

25

孔12aを形成したが、水分配基板11の細孔11aを設けていないチャネルだけに対向して細孔12aを形成しても概同等の効果が得られる。

また、実施の形態1では、アノード側流路基板をカーボン多孔体で形成したが、膨張黒鉛、黒鉛、ファーネスブラックなどのカーボンとフェノール系などの樹脂との混合物からなるモールド成形品に保水層を形成、あるいは条線加工した流路基板を用いても、同様に実施することができる。

上記実施の形態7では、アノード側流路基板の上流部に水分配基板を用いて水を分配する例を示したが、例えば特開平4-144063号公報の実施例に用いられているようなコルゲート構造あるいは発泡金属などの多孔体構造の燃料ガス流路を備えたものについても、同様に水分配基板を用いてアノード側の流路に水を分配するすることができる。

実施の形態1~6では、アノード側流路基板40は、中央部40aと上流部40bと下流部40cとが一体形成されたカーボンプレートであったが、別体とすることもできる。

15 別体とする場合には、中央部40aと上流部40b並びに下流部40cとの境界で水が滞留しないように、下流部40c-上流部40b-中央部40aの順で水の接触角が小さくなるように、もしくは隣合う部分と水の接触角が同等となるように設定することが望ましい。

また、実施の形態1~6では、アノード側流路基板40の下流部40cに密接させて枠体10の溝孔124に吸水基材14を填め込んだが、これに限らず下流部40cのチャネル終端部に吸水部材を填め込んで、吸水された水を吸水部材の終端から溝孔124に滴下して排出するような構成とすることもできる。

また、実施の形態5で説明した保水層や実施の形態6で説明した細溝は、実施の形態7の燃料電池にも応用することができ、同様の効果を奏する。

また、実施の形態1~7のようにアノード側チャネルに水を供給する固体高分子型燃料電池においては、当該アノード側チャネルに水が溜り易いため、アノード側チャネルにガスを選択的に排出する手段や吸水手段、あるいは保水層や細溝

を設けることによって燃料ガスの閉塞を防止し発電特性に大きな効果を奏するが、カソード側のガスチャネルも反応生成水やアノード側からの移動水が滞留して 封鎖される可能性もあるので、カソード側チャネルにも、同様にガス選択排出手段、吸水手段、保水層、細溝などを設ければ、生成水や移動水によるガスの閉塞 を防止する効果が期待できる。

また、実施の形態1~6では、カソード側流路基板30とアノード側流路基板40とは別体であったが、例えば緻密なカーボンプレートを切削あるいはモールド成形して作成したバイポーラプレートを用いても、同様に実施することができる。

10 また、実施の形態 1 ~ 7では、アノード側流路基板に形成されているアノード側チャネルは、互いに平行に形成され、平面(上面)形状、断面形状ともに矩形であったが、平面形状は、矩形に限らずくさび形や蛇行形などであってもよく、、アノード側チャネルの断面形状も、矩形に限らず、台形、三角、U字形などであってもよい。また、アノード側チャネルが必ずしも互いに平行に形成されていなくてもよい。

#### 《実験の部》

#### (実験1)

5

20

25

水分配基板に形成する細孔の孔径と水圧と流量との関係を調べるために、以下の実験を行った。

図20は、その測定結果を示す特性図であって、d=0. 3 mm. 0. 6 mm

1.2 mmの各々の場合について、孔1個あたりの流量q (c c  $\ell$  m i n  $\ell$  m

- )と水圧P(mmH<sub>2</sub>O)との関係を示している(ただし水圧Pは対数目盛り)
- 。図中、 $\spadesuit$ はd=0. 3mm、 $\blacktriangle$ はd=0. 6mm、 $\blacksquare$ はd=1. 2mmについての測定値をプロットしたものであって、各々直線状に並んでいる。
- 更に、孔径 d と上記定数 A との関係、並びに孔径 d と上記定数 P 0 との関係を求めるために、図 2 1 に示すように、d = 0.3 mm .0.6 mm, 1.2 mmのときの孔径 d と上記定数 A との関係(図中◇で示す)、並びに孔径 d と上記定数 P 0 との関係(図中△で示す)をプロットした。

◇を結ぶ曲線は $Y=0.0356X^{-1.2287}$ で表され、 $\triangle$ を結ぶ曲線はY=215 1.012 $X^{-0.8674}$ で表されることから、定数Aと孔径dとの間には $A=0.0356d^{-1.2287}$ …(2)の関係が、また定数P0と孔径dとの間にはP0=21.012 $d^{-0.8674}$ …(3)の関係が成り立つことが予測される。

孔を通過する水の圧力損失は孔の長さ(即ち水分配基板の厚さ)に比例するものと仮定して、上記の式(1). (2). (3)に基づいて、水分配基板の厚さが0.15mmで、 d=0.08,0.2,0.3,0.4,0.5,0.6 mmの場合における流量 g と水圧 P との関係を導き出した。

図22の各直線はその結果を示すものである。

20

25

また、図22において、■は、上記実施の形態7の固体高分子型燃料電池を用いて、水圧Pを300、500、700mm $H_2$ Oとしたときの流量qの実測値をプロットしたものであって、d=0.2mmの直線と略一致している。

この図22の孔径dが0.2mmのグラフを用いれば、上記実施の形態7の固体高分子型燃料において、所望の流量qに設定するために水圧Pをどの程度に設

また、孔径 d が 0.2 mmのグラフでは、水流量が 0 のときに水圧 P が約 1 0 0 mm H 2 O であるので、実施の形態 7 の固体高分子型燃料において、水の溝孔 (溝孔 1 2 1.5 16)に水が充満して水圧 P が 1 0 0 mm H 2 O 程度に到達するまでは細孔から水が出ないことがわかる。このことは、溝孔の中央部に水が行き渡るまでは、水分配基板の端部の細孔から水が出ないことを示すと共に、並びに水分配基板の中央部の細孔からも端部の細孔と同様に水が出ることを示唆している。

なお、この実験結果は、実施の形態 1~6の燃料電池についても同様に当ては まるものである。

#### (実験2)

5

10

25

- 15 上記実施の形態7で用いた水分配基板に対して、次の(a)~(c)のような 処理を施したものを作製し、孔から流れ出る水の状態及び水の分散状態を観察した。
  - (a) 水分配基板の出口側の表面をサンドペーパで磨いて傷をつけて、水との接触角が入口側より出口側で大きくなるようにした。
- 20 (b) 水分配基板の入口側の表面をサンドペーパで磨いて傷をつけて、水との 接触角が出口側より入口側の方で大きくなるようにした。
  - (c) 水分配基板の代わりに多孔性カーボン基板を用いた。

水分配基板(SUS304)の孔周縁部のイオン交換水に対する接触角(室温、空気中)を測定したところ、サンドペーパで磨く前は91°、サンドペーパ#320で磨いた後は70°、サンドペーパ#600で磨いた後は64°であった。

図23は、孔から水が流出する状態を模式的に示す図であって、①は孔の出口側で水が細かい水滴となって分散される様子を示し、②は孔の出口側の周縁で水

が基板の表面に付着している様子を示し、③は隣りの孔の出口にまでつながって 水が付着している様子を示している。

上記(a)の場合は、図23の①の状態が主に観察され、水の分散状態が良好であった。

5 上記(b)の場合は、図23の①と②と③の状態が観察され、水の分散状態は やや不均一であった。

上記(c)の場合は、図23の②と③の状態が観察され、水の分配状態は不均一であった。

これより、水分配基板において、入口側よりも出口側の方を、水との接触角を 小さくすることが良好な分散を得るために有効であることがわかる。

なお、本実験においては、水分配基板の出口側における水との接触角を小さく するためにサンドペーパで磨く例を示したが、水分配基板の表面に水との接触角 が小さい材料の膜を塗布したり、張り合わせたりしても同様の効果を奏する。

15 (実験3)

10

25

実施の形態7に基づき、以下の仕様で実施例の燃料電池Alを作製した。

電極面積: 100 cm²

固体高分子膜:厚さ0.13mmのNaffion115の膜(米国デュポン 社製)

7 アノード及びカソード:共に白金を坦持したカーボンペーパ(白金坦持量は 0 .  $7 \, \mathrm{mg} / \mathrm{cm}^2$ )

水分配基板:厚さ0.15mmのSUS316板に孔径0.2mmの細孔を チャネルあたり1個づつ開設した

また、上記燃料電池Alにおいて、細孔を開設した薄板の代わりに多孔性カーボン板を用いた以外は同様にして、比較例の燃料電池Xを作製した。

そして、実施例の燃料電池Alと比較例の燃料電池Xとを用いて、様々な燃料利用率Ufで作動しながらセル電圧を測定した。

表1並びに図24はその測定結果を示すものであって、燃料利用率とセル電圧 との関係を示している。

#### 表 1

5

燃料利用率	燃料電池A1	燃料電池X
20%	6 5 0 m V	6 4 5 m V
4 0 %	650	630
50%	6 4 5	600
70%	644	540
80%	643	
90%	640	
96%	610	

10

図24から明らかなように、実施例の燃料電池A1は、比較例の燃料電池Xと 比べて、高い燃料利用効率で運転しても安定したセル性能を維持している。

15

### (実験4)

実施の形態2に基づいて、以下の仕様で実施例の燃料電池B1を作製した。

電極面積 : 100cm<sup>2</sup>

固体高分子膜 : パーフルオロカーボンスルホン酸膜

20

アノード : Pt-Ru担持カーボン

カソード : Pt担持カーボン

セル積層枚数 : 16

またこれと同様の仕様で、実施の形態7に基づいて燃料電池A2(ガス選択排 出手段を持たない燃料電池)を作製した。

25 作製した燃料電池B1, A2を、以下の条件で作動させながらセル電圧 (mV) を経時的に測定した。

電流密度 : 0.5A/cm<sup>2</sup>

燃料ガス利用率 : 70%

酸化ガス利用率 : 30%

燃料ガス : H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>(35/65,体積比)

酸化剤 : 空気

5 図25はこの実験結果を示す特性図であって、横軸は時間(分)を示し、縦軸はセル電圧(全セルの平均値)(mV)を示す。

図25から明らかなように、燃料電池A2においては、経時的なセル電圧の低下が認められ、20分程度しか安定した運転ができないのに対して、燃料電池B1では、長時間に渡って安定した発電をすることができることが分かる。

10 これは、燃料電池BIでは、ガス選択排出手段を設けてあるため、燃料電池A2と比べて、運転中におけるアノード側のチャネルでのガス流通が確保されやすいことを裏づけている。

#### (実験5)

15 実施の形態1に基づいて、以下の仕様で実施例の燃料電池Clを作製した。

電極面積 : 100cm<sup>2</sup>

固体高分子膜 : パーフルオロカーボンスルホン酸膜

アノード : Pt-Ruを担持したカーボンペーパ

カソード : Ptを担持したカーボンペーパ

20水分配基板:厚さ0.15mmのSUS316板に孔径0.2mmの細孔を開設

セル積層枚数:16

また、実施の形態2に基づいて、同様の仕様で実施例の燃料電池B2を作製した。 また、実施の形態7に基づいて、同様の仕様で実施例の燃料電池A3を作製した。

25 そして、燃料電池C1、燃料電池B2、燃料電池A3を用いて、以下の条件で作動させ、供給する冷却水の量を変化させながらセル電圧(mV)を測定した。

電流密度 : 0.5A/cm<sup>2</sup>

燃料ガス : H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>(36/64:体積比)

酸化剤 : 空気

燃料ガス利用率 : 60%

酸化ガス利用率 : 15%

5 図26は、この実験結果であって、セルユニット当たりの冷却水量とセル電圧 (mV)との関係を示す特性図である。なお、セル電圧は、全セルについての平 均値である。

図26から明らかなように、燃料電池A3と比べて、燃料電池C1. 燃料電池B2は、高いセル電圧を示している。

10 これは、燃料電池A3と比べて、燃料電池C1や燃料電池B2のようにガスの選択排出機構を備えると、気液混合物が流通するチャネルにおける燃料ガスの閉塞が発生しにくく、アノードの全域に効率よく燃料ガスが供給されることを示している。

また、燃料電池 B 2では、冷却水量を小さくするとセル電圧が低下するのに対して、燃料電池 C 1では、冷却水量を小さくしてもセル電圧の低下は見られず、冷却水量を  $1 \text{ cc} \cdot \text{min}^{-1} \cdot \text{cell}^{-1}$ まで下げても 0. 6 V以上の高いセル電圧を保っている。

これは、燃料電池B2では、水分配基板に開設されている細孔の数が多いので、冷却水量を小さくすると各細孔から均一的に水が流れず、固体高分子膜の保湿がが部分的になされないのに対して、燃料電池C1では、水分配基板に開設されている細孔の数が少ないので、冷却水量を小さくしても各細孔から均一的に水が流れ、固体高分子膜の保湿が全体的になされるためと考察される。

#### (実験6)

15

20

25 上記実験5で作製した燃料電池Clの比較例として、水供給チャネルには水だけが供給され、水供給チャネル以外のチャネルには燃料ガスだけが供給される燃料電池Yを作製した。

燃料電池Yは、燃料電池Clと同様の構成であるが、水供給チャネル以外のチャネルだけに対応してガス分配基板に細孔を形成すると共に、水供給チャネルに対応して水分配基板に開設する孔をより大きく形成した点が異なっている。

そして、燃料電池C1及び燃料電池Yを用いて、燃料利用率を変化させながら 作動してセル電圧(mV)を測定した。作動条件は上記実験5と同様である。

図27から、比較例の燃料電池Yと比べて燃料電池C1は高いセル電圧を示していることが明らかであり、特に燃料利用率の高い範囲でその傾向が顕著である。

これは、比較例の燃料電池Yでは、水供給チャネルには水だけが供給されるので、そのチャネルに対向するアノードの部分には燃料ガスが供給されにくいのに対して、燃料電池C1では、アノード側チャネル全体に燃料ガスが供給されるためと考察される。

#### (実験7)

5

10

15

20

実施の形態6に基づいて燃料電池Dを作製した。アノード側流路基板は、黒鉛とフェノール樹脂との混合物をモールド成型し、研磨紙で研磨することによって 細溝を形成するという条線加工を施すことによって作製した。

また、この燃料電池Dと同様であるが条線加工を施していない燃料電池Zを作製した。

そして、燃料電池D及び燃料電池Zについて、冷却水量-セル電圧特性並びに 電流密度-セル電圧特性を測定した。

冷却水量-セル電圧特性については、冷却水量を変化させながら各燃料電池を 作動してセル電圧 (mV) を測定した。

電流密度-セル電圧特性については、電流密度を変化させながら各燃料電池を 作動してセル電圧(mV)を測定した。

25 作動条件は以下の通りである。

燃料ガス : H,

酸化剤 : 空気

燃料ガス利用率 : 50%

酸化ガス利用率 :

20%

電池温度(中央):約70℃

図28(A)は、冷却水量-セル電圧特性の測定結果を示す特性図である。

本図より、燃料電池Zでは、冷却水量が多くなるにつれてセル電圧が顕著に低 下しているのに対して、燃料電池Dでは冷却水量が多くなってもセル電圧はほと んど変らないことがわかる。

これは、アノード側流路基板としてモールド成型品を用いたので、条線加工を 施していない燃料電池乙は冷却水量が多くなるとチャネルに水が滞留して燃料ガ ス流量が不足する傾向にあるが、条線加工を施した燃料電池Dでは冷却水量が多 くなっても水が滞留しにくいので燃料ガスの流量が確保されるためと考えられる。

図28(B)は、電流密度-セル電圧特性の測定結果を示す特性図である。

本図より、燃料電池D、Zのいずれも、電流密度が大きくなるにつれてセル電 圧が低下しているが、燃料電池Dの方がセル電圧の低下する度合は少ないことが わかる。

これは、上記のように、条線加工を施していない燃料電池 Z は、条線加工を施 している燃料電池Dと比べて、チャネルに水が滞留することにより燃料ガスの流 量が不足してセル電圧が低下しやすいが、電流密度が大きいときほどセル電圧低 下に大きく影響するためと考えられる。

20

5

10

15

#### (実験8)

次の仕様で、実施の形態3に基づく燃料電池Eを作製した。

電極面積 : 100cm<sup>2</sup>

固体高分子膜 : パーフルオロカーボンスルホン酸膜

25

アノード : Pt-Ru担持カーボン

カソード : Pt担持カーボン

セル積層枚数 : 52

ドレン溝の吸水基材:ポリエステル/レーヨン (30/70) の不織布を用い 、端部をマニホールド孔113に突出させた。

また、吸水基材を設けずそれ以外は同様の仕様で、実施の形態1に基づく燃料 電池C2を作製した。

そして、燃料電池C2と燃料電池Eを用いて、平均セル電圧の経時変化を測定 5 した。

作動条件は以下の(1)及び(2)とした。

(1)

電流密度 : 0.5A/cm<sup>2</sup>

10 燃料ガス

: н,

酸化剤

: 空気

冷却水量 : 10cc·min<sup>-2</sup>·cell

燃料ガス利用率 : 99%

酸化ガス利用率 : 30%

(2) 15

25

電流密度

 $: 0.5A/cm^{2}$ 

燃料ガス

:  $H_2/N_2 = 36/64$ 

酸化剤

: 空気

冷却水量 : 10 c c ⋅ m i n <sup>-2</sup> ⋅ c e l l

20 燃料ガス利用率 : 70%

酸化ガス利用率 : 15%

図29(A). (B)は、この測定結果を示す特性図であって、図29Aは上 記(1)の作動条件、図29(B)は上記(2)の作動条件によるものである。

これらの特性図より、燃料電池C2では、経時的にセル電圧が若干低下する傾 向にあり、特に図29 (B) では、発電時間が長くなると燃料電池Eのセル電圧 がかなり低下しているのに対して、燃料電池Eのセル電圧はほとんど経時的変化 がないことがわかる。

これは、ドレン経路を設けていない燃料電池C2では、経時的にガス排出用のマニホールド孔に水が溜まることによって燃料ガスの流通が若干妨げられ、これによってセル電圧が低下し、特に上記(2)の作動条件のように燃料ガス中の水素含有量が少ない場合にはセル電圧の低下に及ぼす影響が大きいのに対して、ドレン経路を設けた燃料電池Eでは、ガス排出用のマニホールド孔に水が溜まらないためと考えられる。

#### 産業上の利用可能性

5

15

以上の本発明によれば、アノード側の流路に燃料ガス及び水を供給して運転す 10 る固体高分子型燃料電池において、燃料ガスが流路内で閉塞されるのを回避し、 アノード全体に対して燃料ガスを供給することができるので、安定して優れた発 電特性を得ることが可能となる。

また、固体高分子膜を全体的に保湿し且つ燃料ガスをアノード全体に効率よく供給することもできるので、燃料電池の発電特性や寿命特性を更に向上させることも可能である。

#### 請求の範囲

1. 固体高分子膜にカソード及びアノードを配したセルが、前記アノードに対向してアノード側流路が形成された第1のプレートと、前記カソードに対向してカソード側流路が形成された第2のプレートとで挟持されてなり、前記アノード側流路に燃料ガス及び水が供給されると共に前記カソード側流路に酸化剤ガスが供給されて発電する固体高分子型燃料電池であって、

前記第1のプレートは、

燃料ガス流れ方向の前記アノードの終端よりも下流側に前記アノード側流路から延設された延設流路を有し、

当該延設流路に、ガスを水よりも選択的に排出するガス選択排出手段が設けられていることを特徴とする固体高分子型燃料電池。

- 2. 前記ガス選択排出手段は、
- 15 ガスを選択的に透過する選択透過部材からなることを特徴とする請求の範囲第 1項の固体高分子型燃料電池。
  - 3. 前記選択透過部材は、

深水処理を施したカーボンペーパ、四フッ化エチレン樹脂多孔質膜若しくはポ リエステル、ポリオレフィン、ポリテトラフルオロエチレン、テトラフルオロエ チレンーペルフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、ガラス、ポリプロピレ ンを支持体とした四フッ化エチレン樹脂多孔質膜、及びポリウレタンコートした ポリエステル繊維からなる群から選択された材料で形成されていることを特徴と する請求の範囲第2項の固体高分子型燃料電池。

25

5

4. 前記ガス選択排出手段は、

スリット構造であることを特徴とする請求の範囲第1項の固体高分子型燃料電

池。

10

5. 前記延設流路の下流側に、

更に吸水、保水し、水を排出させる吸水手段を備えることを特徴とする請求の 5 範囲第1項、第2項、第3項または第4項の固体高分子型燃料電池。

6. 前記吸水手段は、

ポリエステル、レーヨン、ポリエステル/レーヨン、ポリエステル/アクリル 及びレーヨン/ポリクラールからなる群から選択された繊維を主成分とする織布 、不織布又はフェルトで構成されていることを特徴とする請求の範囲第5項の固 体高分子型燃料電池。

7. 前記第1のプレートは、

前記アノードに対向するアノード側チャネルを有し、

15 当該アノード側チャネルの内面に対する水の接触角は、

前記アノードの表面に対する水の接触角よりも小さいことを特徴とする請求の 範囲第1項の固体高分子型燃料電池。

- 8. 前記延設流路の内面に対する水の接触角は、
- 20 前記アノードの表面に対する水の接触角と同等またはそれ以下であることを特徴とする請求の範囲第7項の固体高分子型燃料電池。
  - 9. 前記第1のプレートは、

前記アノードに対向するアノード側チャネルを有し、

25 当該アノード側チャネルの内面には、

細溝が形成されていることを特徴とする請求の範囲第1項の固体高分子型燃料 電池。

10. 前記細溝は、

平均溝幅が5~200μmであることを特徴とする請求の範囲第9項の固体高分子型燃料電池。

5 11. 前記細溝は、

アノード側チャネルの流れ方向に沿って形成されていることを特徴とする請求 の範囲第9項の固体高分子型燃料電池。

- 12. 前記細溝は、
- 10 前記第1のプレートの各アノード側チャネル対して1本以上形成されていることを特徴とする請求の範囲第11項の固体高分子型燃料電池。
  - 13. 前記固体高分子型燃料電池は、

前記ガス選択排出手段によって前記延設流路から排出されるガスを電池外部に 15 導くガス排出通路と、

前記延設流路から水を電池外部に導く水排出通路とを備え、

前記ガス排出通路と水排出通路との間には、

水を案内するドレン経路が設けられていることを特徴とする請求の範囲第1項 の固体高分子型燃料電池。

20

14. 前記ドレン経路は、

前記ガス排出通路と水排出通路を連通する連通溝と、当該連通溝に充填された吸水材とからなることを特徴とする請求の範囲第13項の固体高分子型燃料電池。

25

15. 前記セルと第1のプレート及び第2のプレートがフレームによって支持されたセルユニットが積層された構造であって、

ガス排出通路及び水排出通路は、

前記各フレームに開設されたマニホールド孔によって形成され、

前記連通溝は、

前記各フレームに穿設されていることを特徴とする請求の範囲第14項の固体 5 高分子型燃料電池。

- 16. 前記アノード側流路の入口部に燃料ガスを分配する燃料ガス分配手段と、 水流通空間から前記各アノード側流路の入口部に通ずる所定の形態の孔を通し て、水供給源からの水を前記アノード側流路の入口部に分配する水分配手段とを 備えることを特徴とする請求の範囲第1項の固体高分子型燃料電池。
  - 17. 前記第1のプレートには、前記アノード側流路として複数のアノード側チャネルが形成され、

前記水分配手段は、

25

- 15 前記複数のアノード側チャネルの中の特定のものに対してだけ水を分配することを特徴とする請求の範囲第16項の固体高分子型燃料電池。
- 18. 前記水分配手段が水を分配する特定のアノード側チャネルは、
   前記複数のアノード側チャネルの中から1本おき或は2本おきに選択されたものであることを特徴とする請求の範囲第17項の固体高分子型燃料電池。
  - 19. 前記所定形態の孔の長さは、120 μm~5 mmの範囲内にあり、 当該孔の孔径は、20 μm~3 mmの範囲内にあることを特徴とする請求の範 囲第16項の固体高分子型燃料電池。
  - 20. 前記第1のプレートにおけるアノード側流路の内面には、 親水性材料からなる保水層が流れ方向に沿って設けられていることを特徴とす

る請求の範囲第1項の固体高分子型燃料電池。

21. 固体高分子膜にカソード及びアノードを配したセルが、前記アノードに対向してアノード側流路が形成された第1のプレートと、前記カソードに対向してカソード側流路が形成された第2のプレートとで挟持されてなり、前記アノード側流路に燃料ガス及び水が供給されると共に前記カソード側流路に酸化剤ガスが供給されて発電する固体高分子型燃料電池であって、

前記アノード側流路の入口部に燃料ガスを分配する燃料ガス分配手段と、

水流通空間から前記各アノード側流路の入口部に通ずる所定の形態の孔を通し て、水供給源からの水を前記アノード側流路の入口部に分配する水分配手段とを 備えることを特徴とする固体高分子型燃料電池。

- 22. 前記各アノード側流路の入口部に対する燃料ガスの流入口よりも、前記各アノード側流路の入口部に対する水の流入口が下流側にあることを特徴とする請求の範囲第21項の固体高分子型燃料電池。
- 23. 前記水流通空間と前記各アノード側流路の入口部とは、

仕切板を介して隣接し、

5

15

20

前記所定の形態の孔は、当該仕切板に穿設されていることを特徴とする請求の 範囲第21項の固体高分子型燃料電池。

24. 前記仕切板の表面は、

前記孔の近傍において、

前記水流通空間側よりも前記各アノード側流路の入口側の方が、水との接触角 25 が大きくなるように形成されていることを特徴とする請求の範囲第23項の固体 高分子型燃料電池。

25. 前記所定形態の孔の長さは、120μm~5mmの範囲内にあり、 当該孔の孔径は、20μm~3mmの範囲内にあることを特徴とする請求の範 囲第21項の固体高分子型燃料電池。

5 26. 前記第1のプレートには、前記アノードと対向する複数のアノード側チャネルが形成され、

前記水分配手段は、

前記複数のアノード側チャネルの中の特定のものに対してだけ水を分配することを特徴とする請求の範囲第21項の固体高分子型燃料電池。

10

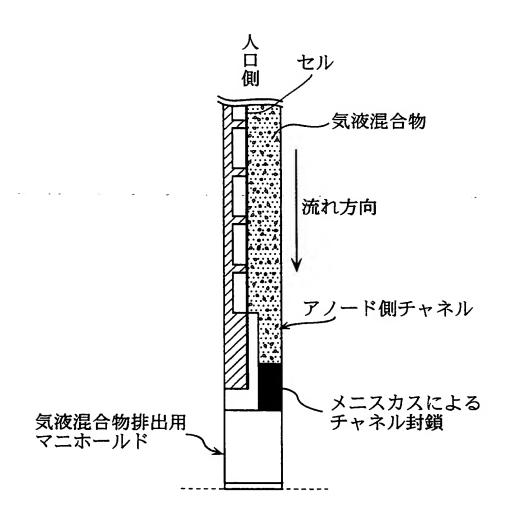
27. 前記水分配手段が水を分配する特定のアノード側チャネルは、

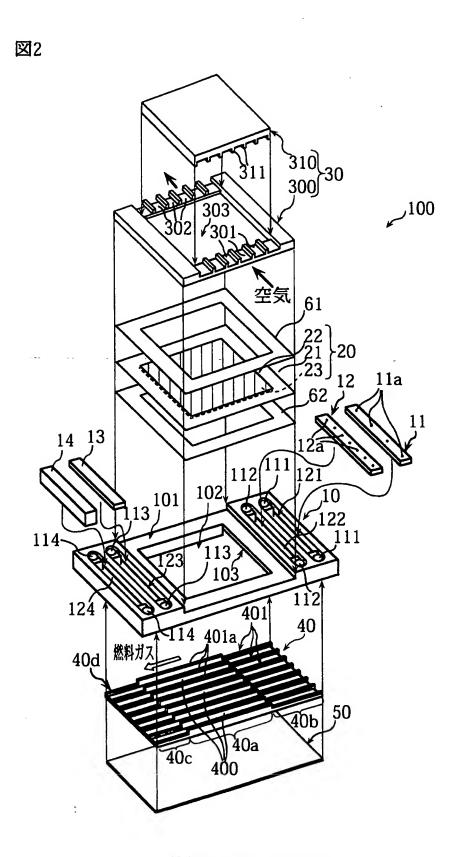
前記複数のアノード側チャネルの中から1本おき或は2本おきに選択されたものであることを特徴とする請求の範囲第26項の固体高分子型燃料電池。

15 28. 前記第1のプレートにおけるアノード側流路の内面には、

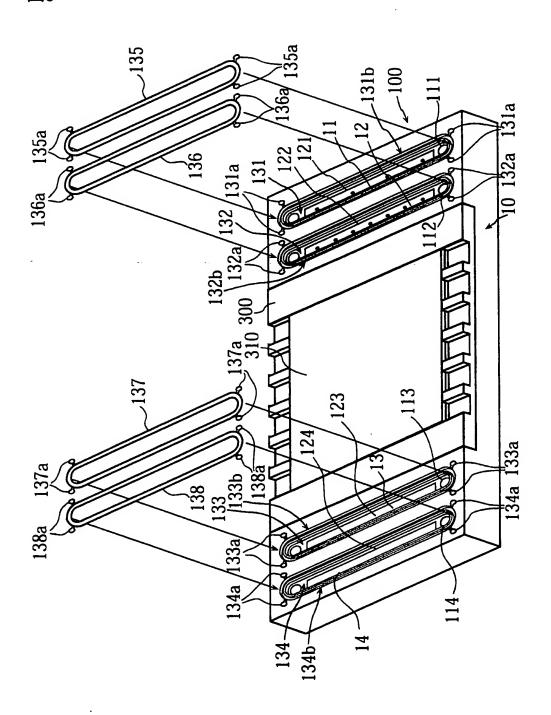
親水性材料からなる保水層が流れ方向に沿って設けられていることを特徴とする請求の範囲第21項の固体高分子型燃料電池。

29. 前記ガス選択排出手段から排出されるガスの流路に、燃料利用率が90 %以上に保たれるようガスの流量を調整するバルブが設けられていることを特徴 とする請求の範囲第21項の固体高分子型燃料電池。



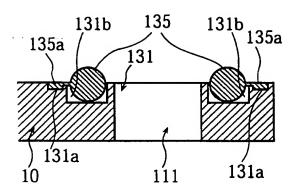


差替え用紙 (規則26)

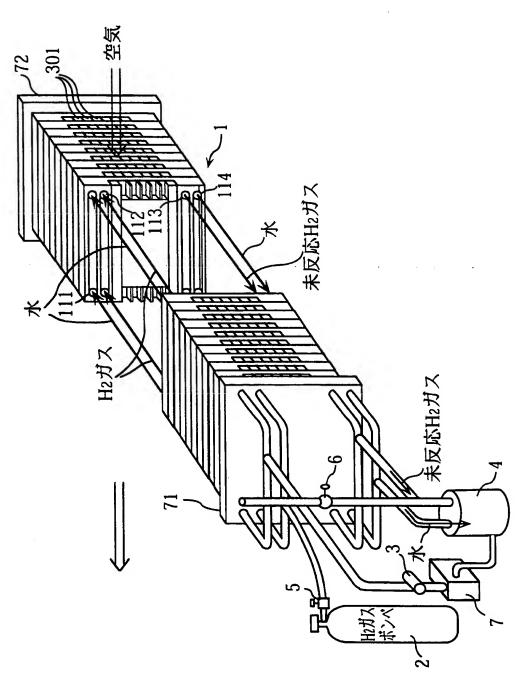


差替え用紙(規則26)

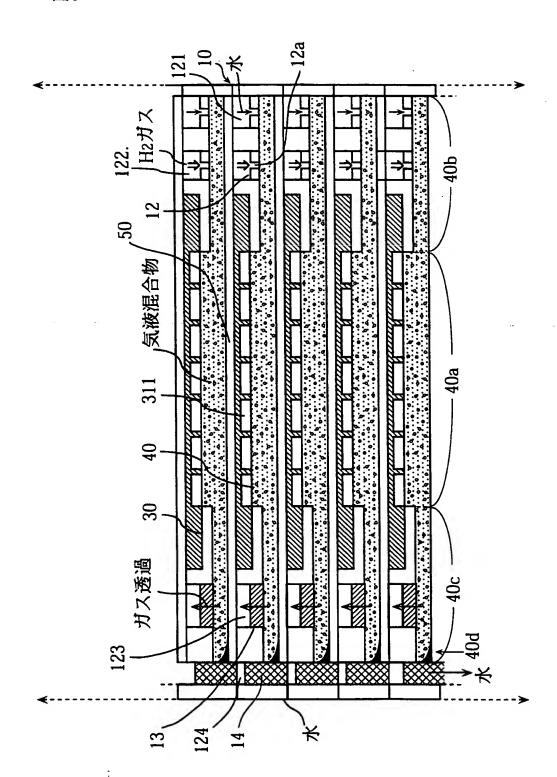
図4



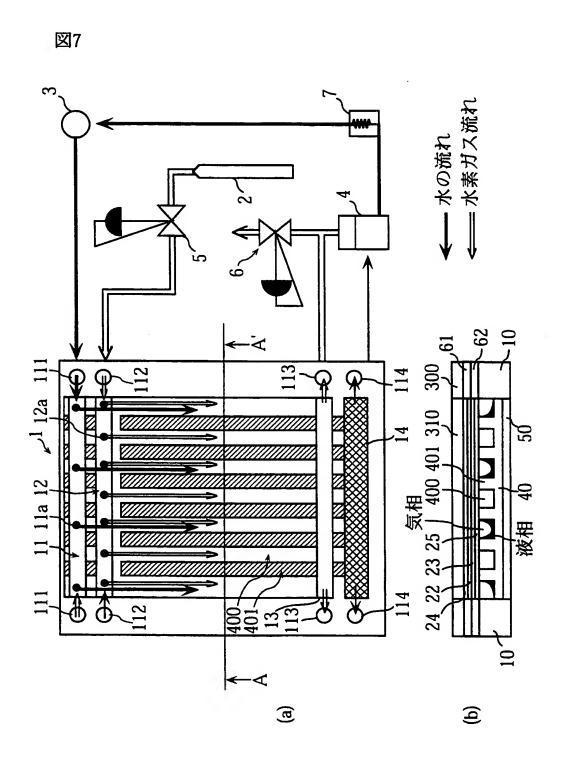




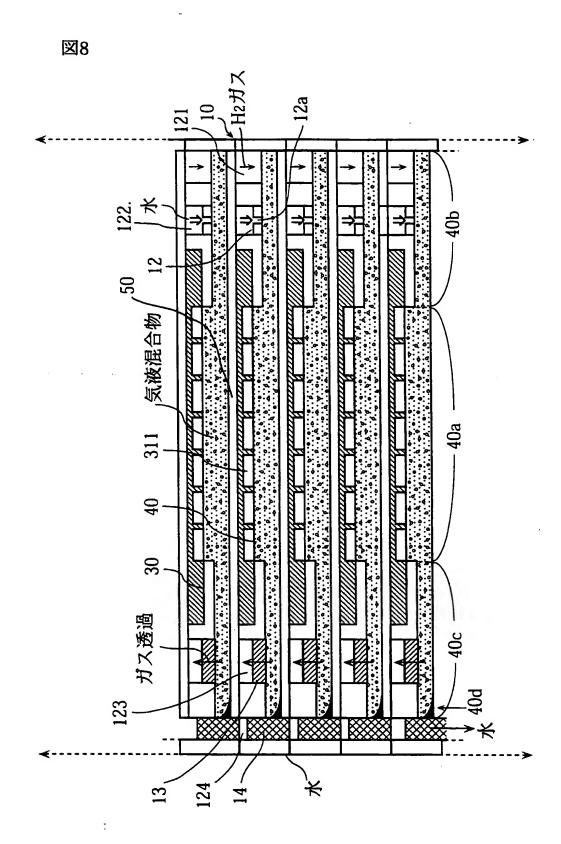
差替え用紙(規則26)



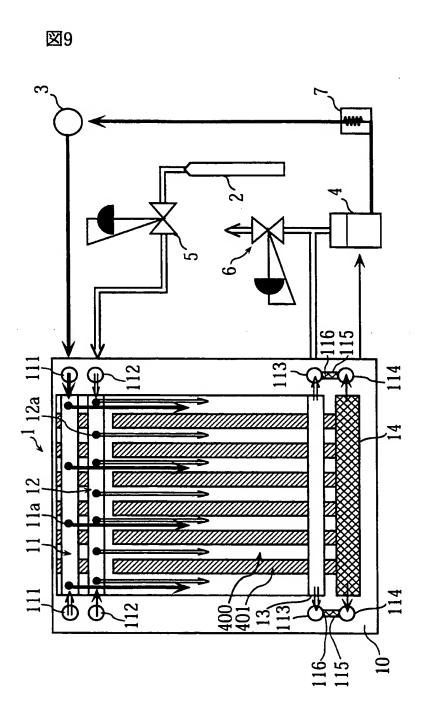
差替え用紙 (規則26)



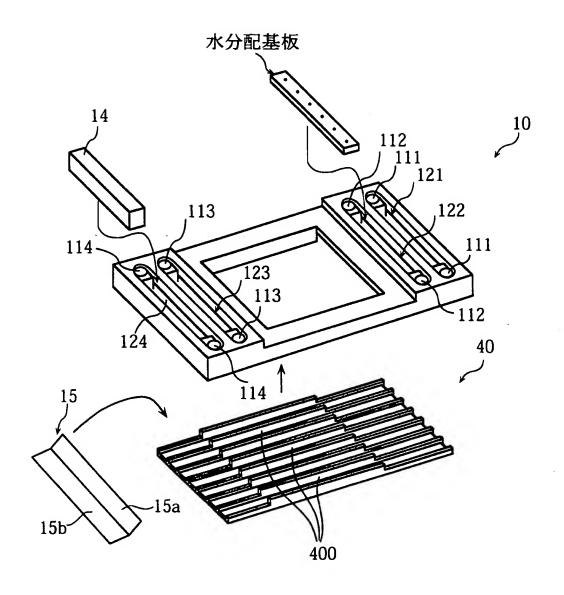
差替え用紙 (規則26)

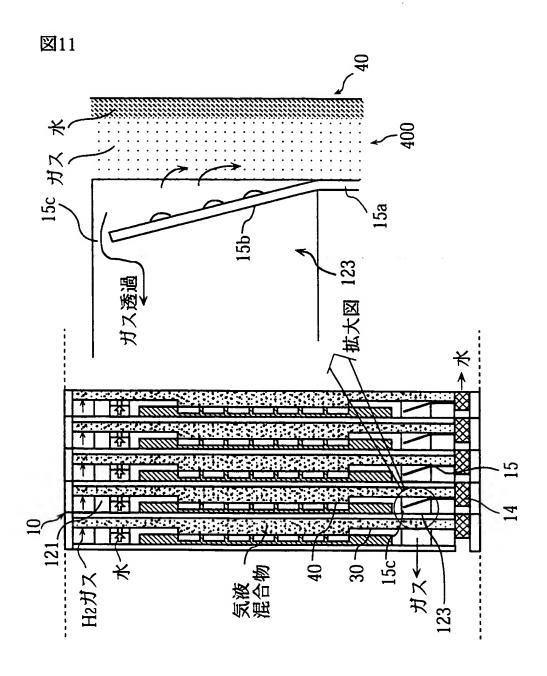


差替え用紙 (規則26)



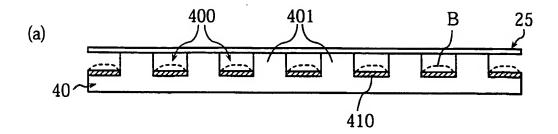
差替え用紙 (規則26)

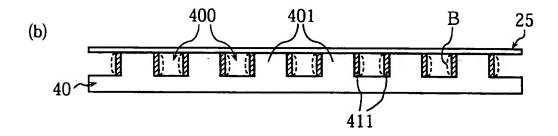


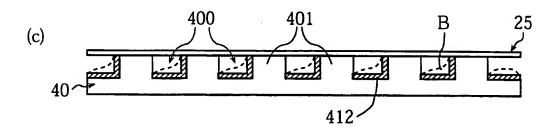


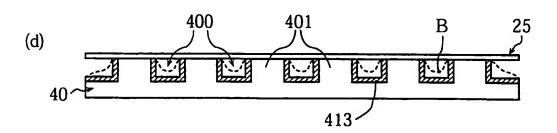
差替え用紙 (規則26)

図12



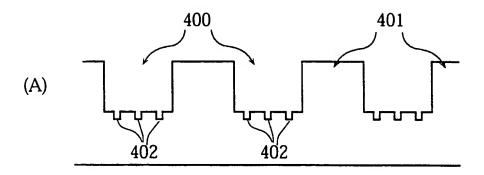


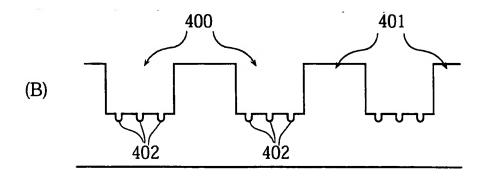


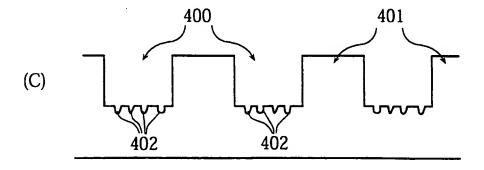


差替え用紙 (規則26)

図13

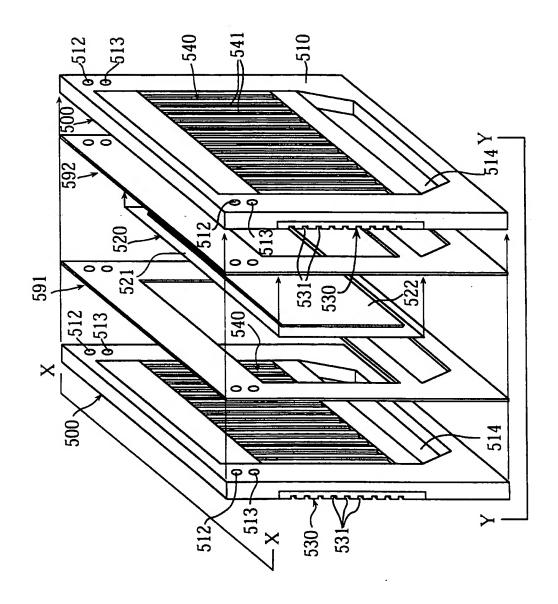






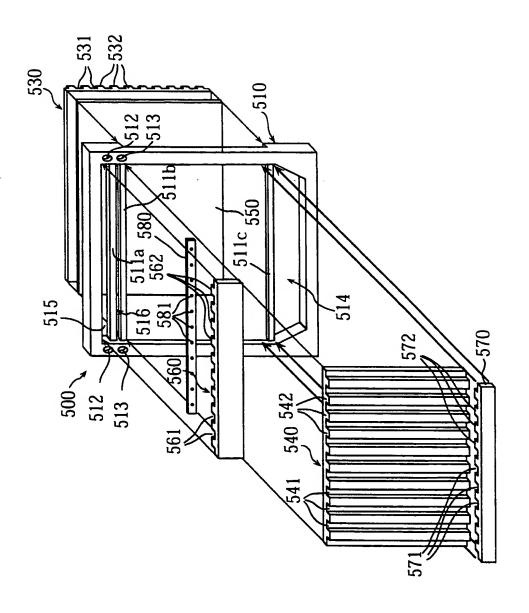
差替え用紙(規則26)

図14

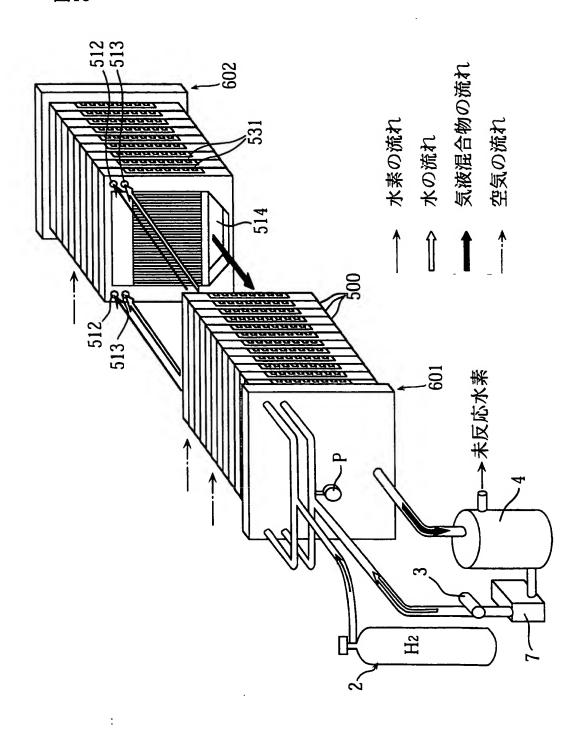


差替え用紙 (規則26)

図15

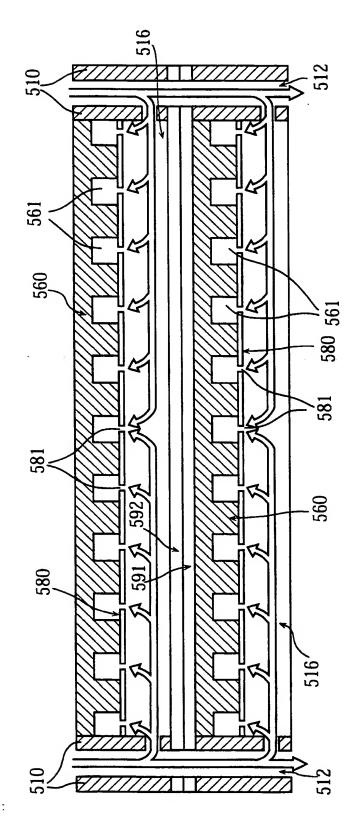


差替え用紙 (規則26)



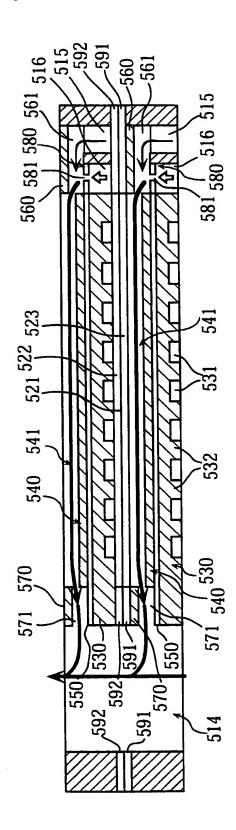
差替え用紙(規則26)

図17



差替え用紙 (規則26)

図18



差替え用紙(規則26)

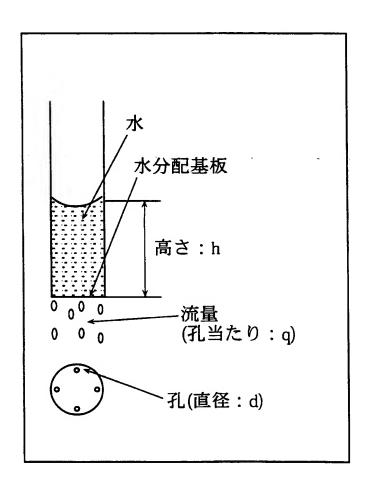
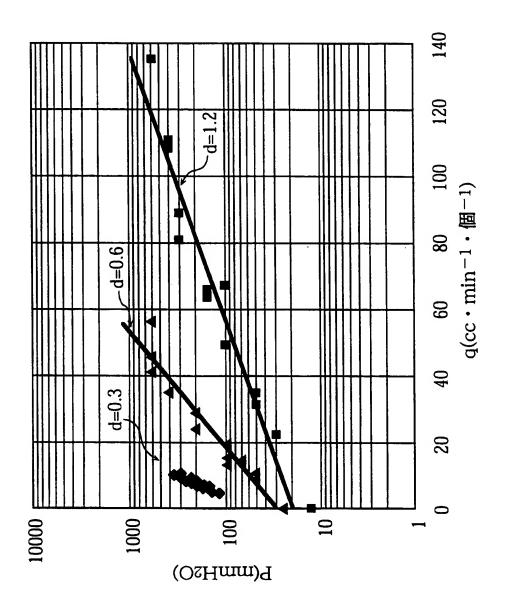
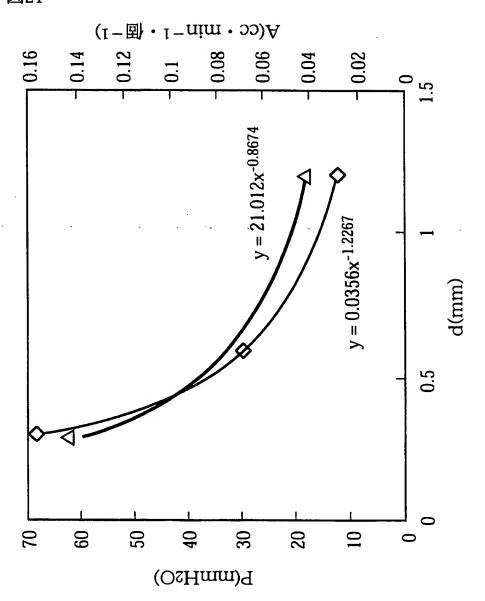


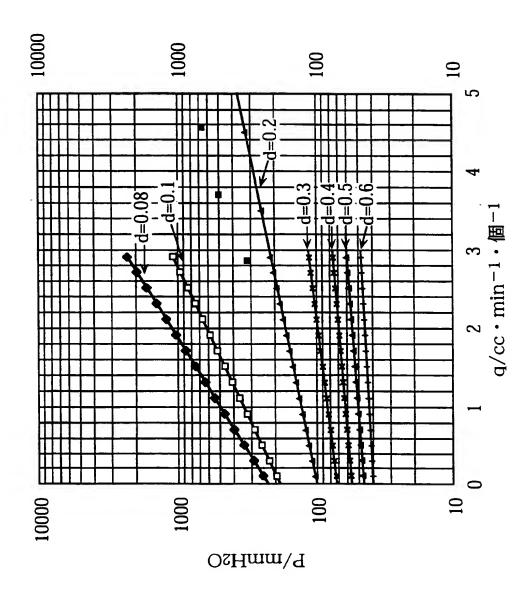
図20



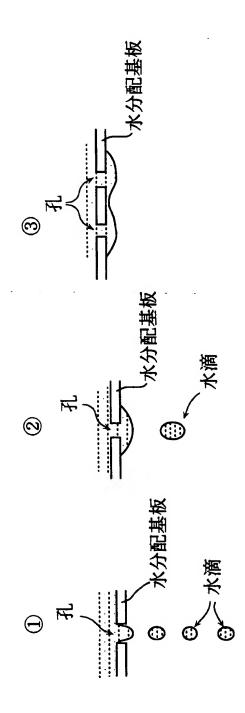
差替え用紙 (規則26)

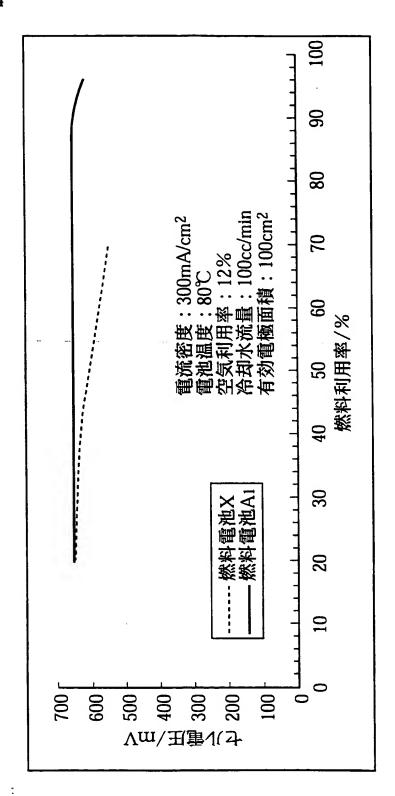


差替え用紙 (規則26)

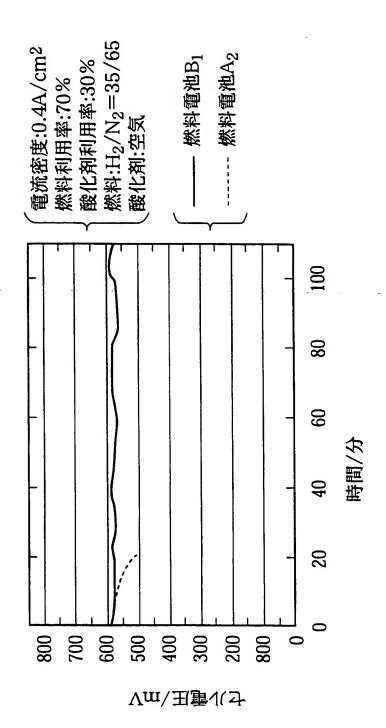


差替え用紙 (規則26)

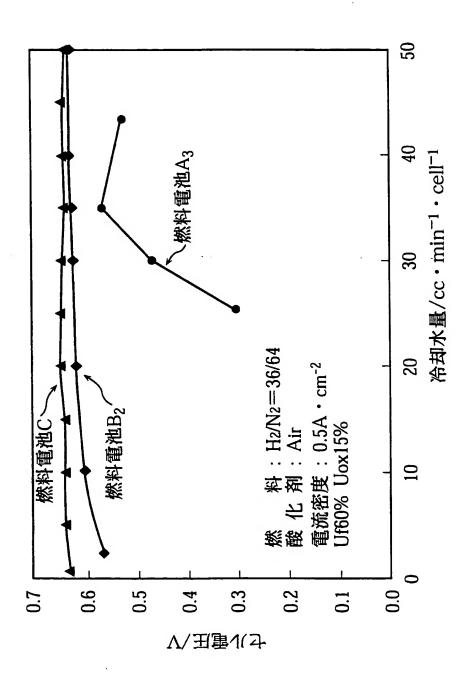




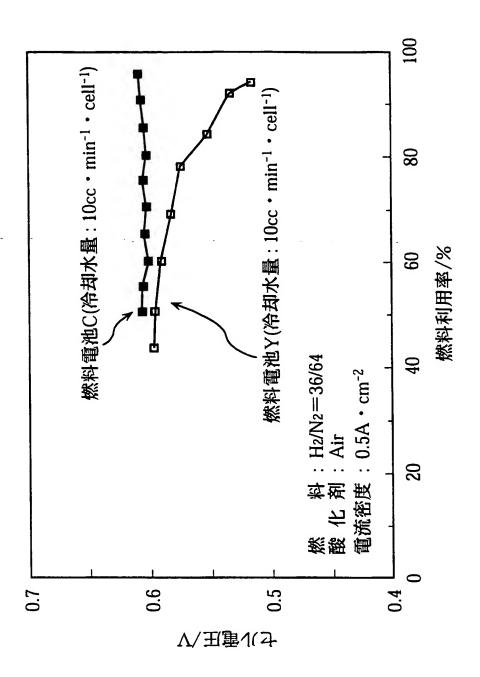
差替え用紙 (規則26)



差替え用紙 (規則26)



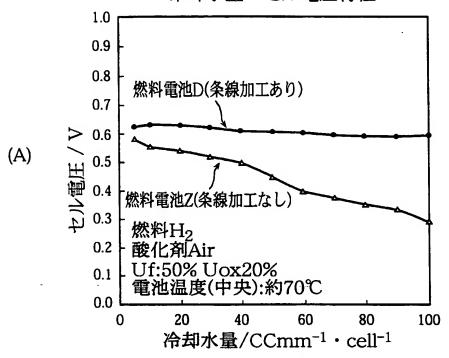
差替え用紙 (規則26)



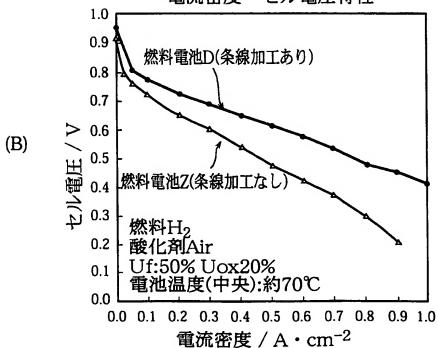
差替え用紙 (規則26)



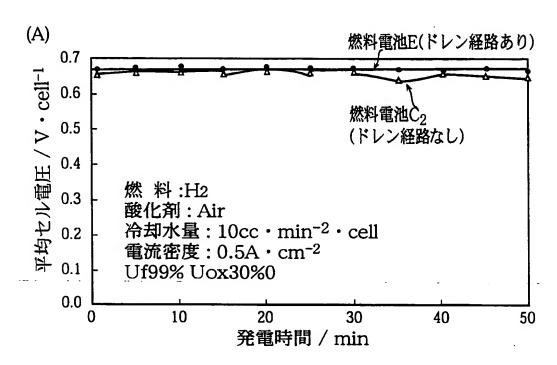
冷却水量ーセル電圧特性

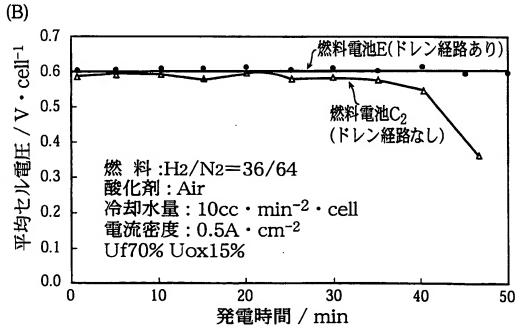


## 電流密度-セル電圧特性



差替え用紙 (規則26)





差替え用紙 (規則26)

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/01707

	A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>6</sup> H01M8/04, H01M8/02, H01M8/06, H01M8/10					
According to	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC					
B. FIELDS	S SEARCHED					
Int.	Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>6</sup> H01M8/00-8/22					
	ion searched other than minimum documentation to the					
Kokai	Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1997 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1997 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1998					
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)						
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category*	Citation of document, with indication, where app		Relevant to claim No.			
X Y	JP, 59-37663, A (General Ele March 1, 1984 (01. 03. 84), Claims ; Figs. 2, 3 & DE, 3		5 1-3, 6-9, 11-13, 16, 20-22, 28, 29			
A	· ·	• *	4, 10, 14, 15, 17-19, 23-27			
Y	JP, 56-97972, A (Hitachi, Lt August 7, 1981 (07. 08. 81), Claims (Family: none)	:d.),	1-3, 6-9, 11-13, 16,			
A	Claims (Family: None)		20-22, 28, 29 4, 10, 14, 15, 17-19, 23-27			
Y	JP, 8-321317, A (Sanyo Elect December 3, 1996 (03. 12. 96 Par. No. [0017]		6			
× Furthe	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.	L.			
* Special categories of cited documents:  'A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  "E" earlier document but published on or after the international filing date document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art document member of the same patent family				
Augu	Date of the actual completion of the international search August 10, 1998 (10. 08. 98)  Date of mailing of the international search report August 18, 1998 (18. 08. 98)					
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer				
Facsimile No.		Telephone No.				

Form PCI/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP98/01707

	Relevant to claim No.	
Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  JP, 8-138692, A (Toyota Motor Corp.),  May 31, 1996 (31. 05. 96),  Claims (Family: none)	7, 8, 20, 28	
JP, 8-138691, A (Toyota Motor Corp.), May 31, 1996 (31. 05. 96), Claims (Family: none)	9, 11, 12	
JP, 4-264365, A (Fuji Electric Co., Ltd.), September 21, 1992 (21. 09. 92), Claims (Family: none)	13	
JP, 7-220746, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), August 18, 1995 (18. 08. 95), Claims ; Figs. 1, 2 (Family: none)	16, 22	
JP, 62-97265, A (Toshiba Corp.), May 6, 1987 (06. 05. 87), Claims ; Fig. 1 (Family: none)	29	
JP, 6-188008, A (Toshiba Corp.), July 8, 1994 (08. 07. 94), Par. No. [0056] (Family: none)	6	
	May 31, 1996 (31. 05. 96), Claims (Family: none)  JP, 8-138691, A (Toyota Motor Corp.), May 31, 1996 (31. 05. 96), Claims (Family: none)  JP, 4-264365, A (Fuji Electric Co., Ltd.), September 21, 1992 (21. 09. 92), Claims (Family: none)  JP, 7-220746, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), August 18, 1995 (18. 08. 95), Claims; Figs. 1, 2 (Family: none)  JP, 62-97265, A (Toshiba Corp.), May 6, 1987 (06. 05. 87), Claims; Fig. 1 (Family: none)  JP, 6-188008, A (Toshiba Corp.), July 8, 1994 (08. 07. 94),	

	風する分野の分類(国際特許分類(IPC)) 1° H01M 8/04, H01M 8/0 H01M 8/06, H01M 8/1				
B. 調査を行	<b>デった分野</b>				
	表小限資料(国際特許分類(IPC)) 1° H01M 8/00- 8/22				
最小限資料以外	<b>外の资料で調査を行った分野に含まれるもの</b>				
日本国実	日本国実用新案公報 1926-1996年				
	開実用新案公報 1971-1997年				
日本国宝	録実用新案公報 1994-1997年 用新案登録公報 1996-1998年				
			·		
国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)					
C. 関連する	ると認められる文献				
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	ときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号		
X Y A	JP, 59-37663, A(ゼネミニイ), 1.3月.1984(01.特許請求の範囲, 第2及び3図&DE, 3323491, A	ラル・エレクトリック・カンパ 03.84),	5 1-3, 6-9, 11-13, 16, 20-22, 28, 29 4, 10, 14, 15, 17-19, 23-27		
Y A	JP, 56-97972, A (株式会 7.8月.1981 (07.08.6 特許請求の範囲 (パテントファミ)	31).	1-3, 6-9, 11-13, 16, 20-22, 28, 29 4, 10, 14, 15, 17-19, 23-27		
区欄の続きにも文献が列挙されている。 □ パテントファミリーに関する別紙を参照。		紙を参照。			
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理 論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献			
国際調査を完了した日 10.08.98		国際調査報告の発送日 18.00	8.98		
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官(権限のある職員) 三宅 正之 印 電話番号 03-3581-1101			

#### 国際調査報告

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP、8-321317, A (三洋電機株式会社), 3. 12月, 1996 (03. 12. 96), 【0017】	6
Y	JP, 8-138692, A(トヨタ自動車株式会社), 31.5月.1996(31.05.96), 特許請求の範囲 (パテントファミリーなし)	7, 8, 20, 28
Y	JP, 8-138691, A(トヨタ自動車株式会社), 31.5月.1996(31.05.96), 特許請求の範囲 (パテントファミリーなし)	9, 11, 12
Y	JP, 4-264365, A (富士電機株式会社), 21. 9月. 1992 (21. 09. 92), 特許請求の範囲 (パテントファミリーなし)	13
Y	JP, 7-220746, A(三菱重工業株式会社), 18.8月.1995(18.08.95), 特許請求の範囲,第1及び2図 (パテントファミリーなし)	16, 22
Y	JP, 62-97265, A (株式会社東芝), 6.5月.1987 (06.05.87), 特許請求の範囲,第1図 (パテントファミリーなし)	29
A	JP,6-188008,A(株式会社東芝),8.7月.1994(08.07.94),【0056】 (パテントファミリーなし)	6
	·	

# This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

### **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:		
☐ BLACK BORDERS		
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES		
☐ FADED TEXT OR DRAWING		
☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING		
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES		
COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS		
GRAY SCALE DOCUMENTS		
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT		
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY		

# IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.